. C. 55(05)

地質調査所月報

第 9 巻　第 8 號

目　次

報　文

本間一郎，小野吉彦：埼玉県北部容水地盤電気探査報告
—関東西部地域調査　第 5 報—…… 1

蔵田延男，安藤　武，森　和雄：東京都城南工業用水源小規模地域調査報告
—関東西部地域調査　第 6 報—…… 9

原田久光：福島県阿武隈山地の鉄マンガン鉱床……23

野沢　保：宮崎県大崩山酸性岩に伴なうミロナイト質礫状岩……33

概　報

応用天文測量実験研究観測中間報告

北海道函館市湯ノ川温泉炭酸ガス調査報告

宮城県蒲沢鉱山周辺地域の含チタン砂鉄鉱床概査報告

資　料

褶曲地域の斑状岩層の問題

硫化物のＳ同位元素に関するデータについて

地質調査所 化成 受 33. 10. 8 付 技術研究部

工業技術院地質調査所

昭和 33 年 8 月

報　文

553.495：550.85(521.53)

岐阜県苗木地方ウラン調査報告
2. 恵比寿鉱山

浜地　忠男*

Report on the Uranium Deposits in the Naégi District, Gifu Prefecture (Part 2, Ebisu Mine)

By

Tadao Hamachi

Abstract

1) The Ebisu mine is situated in the northwestern part of the Naégi district, Gifu prefecture, that is one of the most famous localities producing the rare minerals in Japan.

2) This area consists of granite, quartz porphyry and granite porphyry (the southern part (Minatoyama-kō) mainly of granite and the northern part (Motoyama-kō) mainly of quartz porphyry).

3) The ore deposit is tungsten-quartz vein accompanying with greisen. The greisen is classified into three types; green mica greisen, brown mica greisen and white mica greisen, but lithium content increases in order of white mica greisen, brown mica greisen and green mica greisen. At present, tungsten and bismuth are worked, and the ore minerals are wolframite, scheelite, cassiterite, native bismuth, bismuthinite, molybdenite, arsenopyrite, löllingite, chalcopyrite, pyrite, sphalerite and secondary bismuth minerals. The gangue minerals are quartz, topaz, fluorite and white mica etc. Monazite is observed with naked eyes only in the quartz vein of −17 m adit of the Motoyama-kō.

4) The radioactive minerals are zircon (accessory of the greisen), monazite and secondary bismuth minerals. Monazite is identified by X-ray powder diffraction and its thorium content is lower than that of the placer deposit in the Naégi district. But ThO_2 may be about 3. 4 % by means of radiometric analysis.

The secondary bismuth minerals are identified as koechlinite, bismutite and bismite by X-ray powder diffraction and qualitative X-ray fluorescence analysis etc. The yellow part of bismuth minerals is chiefly composed of koechlinite and bismutite, and it is radioactive and its uranium content is 0.052% by chemical analysis. As the result of the study of α-track by nuclear emulsion, the distribution of α-track is uniform, and there is no strong point source. The writer considers that uranium might be adsorbed or absorbed by the secondary bismuth minerals from the underground water.

要　旨

恵比寿鉱山で稼行されている鉱床は，石英斑岩・花崗岩と，それらを貫ぬくいわゆる苗木型黒雲母花崗岩と母岩とするタングステン—石英脈群で，著しいグライゼン化作用を伴なう。産出する放射性鉱物のうちで，おもなものとしては，モナズ石・放射線蒼鉛二次鉱物がある。前者は苗木地方の砂鉱中のものよりトリウム含量は少ないが，後者とともに選鉱産物中に常に濃集され，坑内の一部では脈中における産状が肉眼でも確認できる。放射鉱物は，自然蒼鉛を中核とし，これを蒼鉛華・泡蒼鉛鉱・koechlinite 等が順次とりまいていることが多く，ウランはおもに表面に近い部分に吸着されている。オートラジオグラフ，X線データによつても，この部位に他種のウラン二次鉱物が生成している形跡はない。

苗木地方全体を通じて放射性鉱物鉱床の地質鉱床学的考察を進める場合，本鉱山によつて得られた資料はきわめて重要な意義をもつ。

1. 緒　言

昭和30年3月下旬，岐阜県恵那郡恵比寿鉱山において，片山信夫の考案による D.C.P. 1型放射線測定器を

* 鉱床部

使用して放射能の測定，特に坑内における岩石および鉱床の放射能の精密測定を行つた。恵比寿鉱山を特にこの目的に選んだのは，昭和29年10月に木村正と筆者とが苗木地区の砂鉱の予察調査の際に，たまたま当鉱山のタングステン並鉱が放射能強度が異常に高く註1)，そのなかにモナズ石が含まれていることを確認したためである。

筆者は調査期間中，主として坑内の調査を行つたので当鉱山の地質，鉱床の概略と放射性鉱物について報告する。

本鉱山の鉱床規模は大きいが，観察しうる坑道は，湊山坑では地並—下3番坑(−47m)，本山坑では地並—6番坑(+30m)のみで，坑内ではモナズ石を確認できなかつた。

なお，調査中および室内作業中，種々と有益な御助言をいたゞいた東京大学片山信夫教授，京都大学早瀬一一助教授に深く感謝する。また東京大学大学院学生加藤昭氏は恵比寿鉱山を昭和30年に数回にわたり調査研究し，本山坑下1番坑 (−15m) で石英脈中にモナズ石が存在することを発見し，その貴重な資料を呈示していたゞいた。こゝに深く感謝の意を表す。

2. 位置および交通

恵比寿鉱山は岐阜県恵那郡蛭川村301にあり (5万分の1地形図付知)，有名な苗木地方の砂鉱地帯の北西縁にあつて，恵那市(旧大井町)北方約 10km の位置にある。

当鉱山に至るには次の径路がある。

中央本線大井駅前 —バス 40分 (12km)→ 蛭川村和田 —徒歩 2分→ 鉱山

3. 沿革および現況

当鉱山は明治時代から採掘されており，幾多の盛衰を経て，現在に至つている。現在はタングステンと副産物として蒼鉛を回収している。

3.1 鉱業権

権者：大阪市東区高麗橋2の9 野村ビル内，共栄鉱業株式会社

鉱種：銅・蒼鉛・錫・重石・水鉛

鉱区番号：岐阜県採登 131号

(なお，昭和30年9月から，鉱業権者は東京都中央区新川2丁目2番地，東京タングステン株式会社となつている)。

3.2 産 額

年 度	重石精鉱量 (t)	WO_3 (%)	粗鉱量 (t)	W
昭和 27	26.74	68	11,400	
〃 28	37.10	68	16,700	
〃 29	25.82	68	11,800	

蒼鉛の産額については詳しい資料はないが，例和30年4月～12月に 279.5kg (Bi : 99.95 %) た。その期間中の重石精鉱量は 14,872kg である重石精鉱の約2%の量の蒼鉛精鉱を産出したものれる。

3.3 従業員

職員：事務 2，採鉱 3，選鉱工作 2，計 7

鉱員：坑内 25，坑外 25，計 50

4. 地 質

当地域に分布する岩石の記載および相互関係には，すでに柴田秀賢[1] の研究があるが，坑内に分岩石は次の通りである。

(1) 古生層(ホルンフェルス)
(2) 石英斑岩
(3) 花崗斑岩
(4) 黒雲母花崗岩

4.1 古生層(ホルンフェルス)

この岩石は苗木地方でも，野外で全く分布した当鉱山では湊山坑0m坑地並3号鎚西部，4号鎚および本山坑下 13m 地並東部 (加藤による) にる。いずれも石英斑岩に貫ぬかれ，黒雲母ホルンスとなつている。湊山坑0m坑地並4号鎚西引古生層が石英斑岩に貫ぬかれ (古生層は捕獲岩とり込まれたのかもしれない)，さらに花崗岩によぬかれている。

古生層は当地域の石英斑岩その他の酸性岩類よく，当地域の基盤をなすものといわれている。

4.2 石英斑岩

本山坑の大部分と湊山坑の一部分に分布する。方に広く分布する石英斑岩は帯緑灰色を呈し，石晶が径5mm程度であるが，本山坑に分布するも白色～白色を呈し，部分的に石英の斑晶が消失し長岩質となる。

斑晶としては石英・正長石(一部ペルト石質)，斜長石(大抵絹雲母が部分的に交代する)および黒みられ，石基は石英・正長石からなる。黒雲母は緑色を呈し，緑泥石および白色雲母に変わつていがしばしばある。

註1) フィリップス・ポケット・バッテリー・モニターによると，大量の並鉱は 200～300 c.p.m. を示した。

.3 花崗斑岩

本山坑の0m坑地並1号鑓（回生鑓）西部お
6番坑（上 13m坑）地並の2号鑓西引立に
している。暗緑色の石基をもち，正長石の
cm に及ぶ斑晶を有するのが特徴的であ
他の石英等の斑晶は小さい。これと石英斑
の関係は不明であり，石英斑岩との境界に
くに従がい，正長石の巨晶の大きさおよび
量が減少し，明確に石英斑岩との境界を引
とは難かしい。花崗斑岩の形は明瞭な岩脈
呈するとはいいがたく，むしろ不規則な形
呈しているといえる。したがつて花崗斑岩
英斑岩との関係は，坑内の観察だけから
前者が後者を貫ぬいたものか，あるいは両
ほとんど同時の迸入で互に漸移しているに
ないのかわからない。

4 黒雲母花崗岩

雲母花崗岩は本山坑では全くみられず，湊
の大部分に分布する。いわゆる苗木型花崗
属するが，湊山坑でみられるものも，その
に変化があり，ときには斑状を呈する場合
る。石英・正長石（ときにペルト石質）・斜
・黒雲母からなり，斜長石は絹雲母により
的に交代されることが多く，黒雲母は褐色
あるが，外縁が緑色を呈し，あるいは白色
する場合がある。

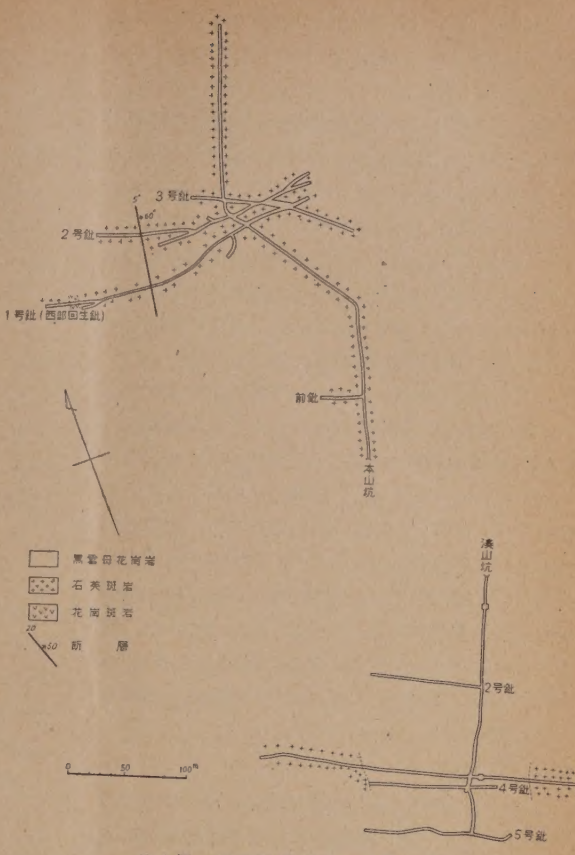
内に分布する斑岩類および花崗岩の黒雲母が緑色～
に変わることは一般に認められるところであるが，
現象が後述の鉱化作用と密接な関係のあるグライゼ
作用と直接関係があるものかどうかは問題である
肉眼的には認められない雲母—石英（ときに螢石・
を伴なう）の細脈が鏡下にしばしば認められ，その
部では特に上述の現象がみられる点から，一応グラ
ン化作用による生成物とも考えられる。

5．鉱　床

床は著しいグライゼン化作用を伴なうタングステン
英脈である。富鉱山では少なくとも幅 1cm 以上の
は，10本余りのタングステン石英脈がみられるが，
重要な脈は湊山坑では3号鑓，本山坑では1号鑓（西
回生鑓）である。現在主として採掘されているのは
坑の回生鑓である。

脈，割れ目および断層

脈の走向は E—W ないし N60°W で，傾斜は本山
は南方，湊山坑では北方に急斜する場合が多い。本
の脈は，一般に走向方向に一つの脈が連続的に続く



第1図　恵比寿鉱山0m地並地質図

ことはなく，脈とほゞ直交する割れ目，あるいは断層によつて寸断される場合があり，特に本山坑で著しい。鉱山側および本報告中で使用している第何号鑓という名称は，こんな脈の集合を意味している。例えば本山坑1号鑓の西部は，鉱山では回生鑓と呼ばれている。

各鉱脈の走向・傾斜およびその規模等は第1表に示した。

第1表　主要鉱脈の走向・傾斜および規模

鉱脈名	走向	傾斜	走向延長 (m)	傾斜延長 (m)	脈幅 (m)
本山坑 1号鑓	N80°W～N80°E	80～90°S	250	40	0.20
2号〃	〃	〃	200	70	0.15
3号〃	N80°W～N60°W	〃	150	60	0.10
湊山坑 1号〃	N75°W	80～90°N	—	—	—
2号〃	〃	〃	100	15	0.10
3号〃	〃	〃	300	120	0.40
4号〃	〃	〃	110	50	0.30
5号〃	〃	〃	130	20	0.20

すでに説明したように，湊山坑の母岩は大部分が花崗岩である。湊山坑では石英脈は花崗岩中で優勢であるが，石英斑岩では劣勢になり，大抵消失する。この例は0m坑地並の3号鑓の東西の両端附近，4号鑓の西の引立，3番坑(−47 m 坑) 地並の3号鑓の西引立附近でみられる。これに対して本山坑では花崗岩は全く分布せずに，細粒の石英斑岩が大部分を占め，一部に花崗斑岩が分布するが，石英脈の発達の差は湊山坑の花崗岩と石英斑岩との差ほどには明瞭ではないが，花崗斑岩中の方が石英斑岩中よりもやゝ劣勢となる。この例は6番坑 (+13 m) 地並の2号鑓の西引立附近で観察される。

鉱脈にほゞ直交する割れ目あるいは断層は特に本山坑で多い。割れ目は特に鉱山生成前と認められる場合があり，白雲母—石英の細脈が充塡し，母岩にグライゼン化作用を及ぼしていることもある。断層のうち最も大きいものは鉱山で「大断層」と呼ばれているもので，本山坑で1号鑓および2号鑓を切つているが，両側のずれは大したことはない。大断層は N—S, N5°E の走向，40～80°E の傾斜をもち，最大幅2m の破砕帯をもつている。湊山坑では1番坑(−17 m)地並5号鑓の西引立に N40°±W の方向に大きな断層があるが，すでに坑道が半ば崩壊して，その詳細についてはわからない。

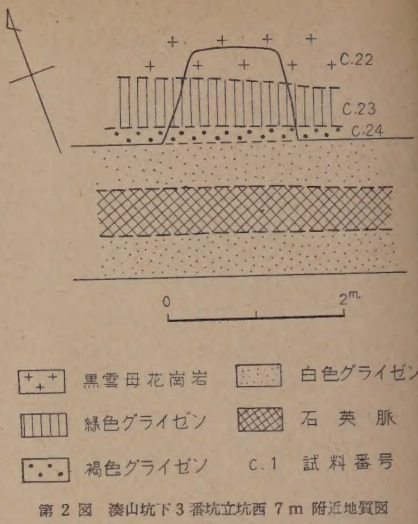
5.2 グライゼン

鉱脈の両側にはグライゼンが発達する。特に湊山坑の鉱床では著しい。一般に花崗岩を母岩とする場合の方が，石英斑岩を母岩とする場合よりも，はるかにグライゼン化作用は著しい。花崗岩を母岩とする湊山坑では，すでに説明した各脈の両盤はもちろん，立入れ坑道でも著しいグライゼン化作用が認められ，この場合，脈充塡のない小割れ目があることもあれば，石英細脈があることもあり，幅数 m にわたり発達する。これに反して，石英斑岩を母岩とする本山坑ではグライゼン化作用は著しくなく，一般に石英脈の両盤に，石英脈の脈幅程度のものが発達する。

模式的なグライゼン化作用の様式は第2図に示す通りである。すなわち脈に近い部分から，白色雲母—石英岩(白色) → 褐色雲母—石英岩 (褐色) → 緑色雲母—石英岩(緑色) →原岩と各変質帯がみられる。これらの岩石は主成分鉱物が雲母と石英とであり，長石が全くみられなく螢石および黄玉を含むことがあることから，グライゼンと呼ばれてさしつかえない。

(1) 白色雲母—石英岩

この岩石が発達する場合は，最も内側の石英脈に接している。肉眼的には石英と白色雲母とからなる白色珪質岩であり，石英脈と類似の外観を呈している。一般に石英が80～90 %を占め，白色雲母[註2]が残りの大部分を占める。副成分鉱物としては黄玉およびジルコンが認められた。ときには湊山坑 0m 坑3号鑓でよくみられるように白色雲母のみからなる部分が発達することがあり，上記珪質岩中に径約 50 cm の塊をなしていることがあり，あるいは脈状に珪質岩中に発達することもある。



第 2 図 湊山坑下3番坑立坑西 7 m 附近地質図

(2) 褐色雲母—石英岩

この岩石が発達する場合は，白色雲母—石英岩側，緑色雲母—石英岩の内側に存在する。外観は暗雲母を伴なう珪質岩で，石英が70～80 %，残りを類が占めている。副成分鉱物としては黄玉，螢石が鏡下に認められる場合もあり，特に前者が20 %の量を占めるものもある。放射能鉱物としては微量ルコンとモナズ石様鉱物が認められたにすぎない。

鏡下では雲母類は白雲母・絹雲母および暗褐色雲大別されるが，暗褐色のものが最も多量で，石英で主成分鉱物をなす。暗褐色雲母は針状を呈して，一暗褐—褐色の多色性を示し，密接に白色雲母および泥石を伴なうが，ときには全く多色性を示さず，暗呈して褐鉄鉱様鉱物となつている場合がしばしばれ，これと同様なものが，石英の粒間を細かく充塡場合がみられる。このような褐鉄鉱物質がグライゼ作用によつて生成されたとは考えられない。グライ生成には直接に関係なく，地下水の作用で生成されのと思われる。

(3) 緑色雲母—石英岩

最も外側に発達し，(1)および(2)が発達しない

註2) 繊維状の絹雲母，および板状の白雲母もあ

も，相当優勢に発達する。帯緑色の珪質岩で，肉眼的は雲母の緑色部が石英の部分より多い。石英斑岩あるは花崗岩の石英が緑色の雲母のなかに斑晶状に残り，崗岩も一見斑岩様外観を呈する。

石英の量は前2者に較べると少なく，最大50％程度あり，雲母類の量が多くなる。鏡下では螢石は普遍的認められ，数％程度あり，黄玉もほとんど大抵認めらる。白色雲母（大部分が白雲母）と緑色雲母は，加藤により次の光学性が得られ，鉄リシア雲母とされてい

=1.620±0.02，β=1.637，γ=1.637，2V(−)≒4°
=pale green，Y=bluish green，Z=green opt.
lane // to 010

彩色性で青味を帯びた緑色を呈するものはまれで緑色緑色を呈するものが多く，C—23（湊山坑3番坑並3通立坑東7m下盤）中の雲母を分析した結果，Li_2O の有量は第2表の通りである。これでわかるように雲母色が緑色を呈する度合が多くなるにつれて，Li_2O のが増大する。また第2図の試料について岩石全体の含有量は第3表の通りであり，Li の量が原岩—白色

第2表　各種雲母の Li 含有量

料名	B	C	D	E
$_2O$(%)	0.172	0.107	0.086	0.053

註　C23（緑色グライゼン）を粉砕して80～100 mesh の粒度のものを5極磁選機で選別した。B,C,D,E の順に磁性が弱い。
B：ほとんど緑色雲母からなる
C・D：緑色—白色混合物，前者が緑色が多い
E：石英と白色雲母が大部分を占める

分析：高橋　清・安藤　厚

第3表　各種グライゼンの Li 含有量

料番号	C　22	C　23	C　24	C　52
(%)	0.004＞	0.04	0.02	0.004＞
石名	未変質花崗岩	緑色グライゼン	褐色グライゼン	白色グライゼン

分析：高橋　清・安藤　厚

ライゼン→褐色グライゼン→緑色グライゼンと増大す Li_2O の量が最も緑色の強い雲母を主とするもので0.17％程度である点から，こゝではこの雲母を緑色雲母と呼ぶことにする。この緑色黒雲母の周辺部は大白雲母に変化しており，一部はほとんどレターデイションを示さない緑泥石様鉱物となつている。白雲母は緑黒雲母の周辺部に発達するほか，単体で産出する。絹母は黄玉の割れ目を充たして細脈状に発達する。

黄玉と螢石との関係は，後者が前者に完全に包まれている関係がたつた一つ観察された。螢石は自形を呈することはなく，ほとんど常に雲母中に包まれて散点し，石英の部分にはない。

放射能鉱物は鏡下ではジルコンおよびモナズ石が認められる。ジルコンはほとんど常に緑色黒雲母および白雲母中に存在し，特に前者中に散点し最大径 0.8 mm であるが，普通 0.01～0.02 mm 程度のものが多い。明瞭なモナズ石は鏡下でたゞ一つの薄片から認められた。これは長径 0.8 mm の自形を呈し，石英の部分に存在して，同じ位の大きさの自形石英と共存している。雲母中にモナズ石があるかどうかは鏡下では確認しえなかつた。

以上の3種類のグライゼン中，特に緑色グライゼン中に，ときには鉄マンガン重石，輝水鉛鉱および錫石が少量認められる。また Li の濃集については，第3表のように緑色グライゼンが最も大きい。

また D.C.P. 1型による放射能強度測定の結果は，一般に緑色グライゼンが最も強く，石英脈が最も弱い。緑色グライゼンおよびその他の岩石のウラン含有量は化学分析の結果はいずれも 0.000％を示しており，その程度の精度の分析では差は現われていない。すでに述べたように，ジルコンが緑色グライゼン中にやゝ多いことがわかつたが，これが緑色グライゼンが他の岩石に比較して，やゝ放射能強度が強い原因かもしれない。

5.3　鉱物特に放射性鉱物

石英脈中に存在する鉱石鉱物は鉄マンガン重石・灰重石・自然蒼鉛・輝水鉛鉱・黄鉄鉱・黄銅鉱・硫砒鉄鉱等で，脈石鉱物は石英のほか白雲母・絹雲母・螢石・黄玉等である。なお選鉱産物からは錫石，少量の閃亜鉛鉱（ケン滴状の黄銅鉱）が認められる。採掘の対象となつている鉄マンガン重石のほか，輝水鉛鉱は特に本山2号鏈西部では主要鉱石鉱物である。

調査後，昭和30年11月，回生鏈の西方に東天鏈が発見され，こゝでは加藤昭により，多量の砒鉄鉱が鉄マンガン重石と共生することがわかつた。

5.3.1　放射性鉱物

ジルコン以外の放射性鉱物としてはモナズ石と蒼鉛の二次鉱物が認められた。

モナズ石：　調査当時は坑内で肉眼的に観察し得なかつた。僅かに選鉱産物中と，グライゼン中の顕微鏡的なモナズ石を認めたにすぎない。選鉱産物中のモナズ石の動向については，すでに昭和31年6月日本鉱物学会において片山が発表した通りである。

昭和30年7月，加藤により，調査当時水没中の本山坑下一番坑3号鏈東引立で走向方向約 10 m の範囲に肉眼的にモナズ石が確認された。こゝでは石英はモナズ石

第4表 モナズ石のX線粉末回折表

(1)		(2)			
I	d	hkl	d (cak)	d (obs)	I
1	5.24	$\bar{1}01$	5.13	5.23	4
2	4.81	110	4.78	4.72	4
2	4.71	011	4.67		
3	4.91	$\bar{1}11$	4.13	4.17	6
1	4.11	101	4.11	—	—
1	4.01				
3	3.52	111	3.54	3.52	5
		120	3.50	—	—
6	3.31	200	3.29	3.31	7
1	3.25				
		002	3.12	—	—
10	3.10	120	3.08	3.09	10
		021	3.05	—	—
3	2.99	210	2.98	2.99	2
		$\bar{2}10$	2.92	—	—
		$\bar{1}21$	2.88	—	—
6	2.87	$\bar{1}12$	2.88	2.88	7
		012	2.86	—	—
		121	2.66	—	—
2	2.61	$\bar{2}02$	2.57	2.61	2
1	2.50				
		211	2.45	—	—
		$\bar{2}12$			
2	2.45	112		2.45	3 (b)
1	2.40	220	2.40	—	—
4	2.19			2.19	4
4	2.15			2.139	6
4	1.966			1.969	5
				1.963	1
1	1.938				
3	1.897			1.899	2
3	1.874			1.875	6 b
1	1.865				
1	1.800			1.800	2
3	1.763			1.766	4
3	1.740			1.746	6
2	1.694			1.695	4
1	1.647			1.651	1
1	1.629				
2	1.603			1.605	1
n.d.				1.541	4

(1) 恵比寿鉱山産モナズ石 Cu/Ni
(2) Monazite; Chochi-wan, Southern Korea by A. Pabst (Am. Min. Vol. 36, No. 60-65, 1951)

の附近のみ暗灰色となり，他ではみられない鉄雲母が存する。フィリップス・ポケット・バッテリー・モーの計数値註3)は 137 c.p.m. を示す。

モナズ石は選鉱場の粗選品から室内用の磁選機で比的容易に濃集される。特にフランツ社製アイソダイック・セパレーターを使用すればほとんど混合物の資料が得られる。

選鉱場から手選した比較的大きいモナズ石を集めX線粉末回折像を得た結果は第4表の通りである。のため朝鮮産のモナズ石を併記したがほとんど一る。

また，この試料の放射能強度を測定した結果は次りである。すなわち小容器に一杯に入れて(約 0.2 gイガー管の窓に密着註4)して5分間計測すると 651ントである。苗木の砂鉱産および ThO_2 6.14 %をする朝鮮産モナズ石は同一条件でそれぞれ 1198 c/5および 1093 c/5 min である。このときの自然計数は間で 104 カウントであるから，おのおの自然数を差いた数値が3つのモナズ石の放射能強度を示すことる。したがつて朝鮮産モナズ石を恵比寿産モナズ石木産モナズ石とはそれぞれ 0.55 および 1.11 となるた早瀬によると恵比寿産モナズ石は苗木産モナズ石半分の飛跡を示すことがオートラジオグラフにより されている。ウランおよびトリウムが同じ割合で増ると仮定すると，朝鮮産のトリウム含有量から，恵産のものは，ThO_2=3.4 %，苗木産のものはThO_2%を含有することになる。これは苗木砂鉱中のモナがペグマタイト期の生成であるのに対して，当鉱山ものは，それよりやゝ後期の気成時代の生成であるがその原因と考えられる。すなわち当地では Th はマタイト時代にその大部分が，モナズ石等の鉱物の分として沈殿し，後期の気成時代ではトリウムの濃減小して，モナズ石中の Th 量が減小したと推定る。

蒼鉛の二次鉱物：中心部が自然蒼鉛からなり，向かい暗灰色→黄色に変化する蒼鉛鉱がしばしばみる。坑内では充分多量の試料が得られなかつたので鉱場で濃集された鉱物について，その性質を調べた

註3) 当測定器で，鉱山事務所では，40～43 c.p(10分測定)，坑内の岩石中最も大きい値を緑色グライゼンでは，83 c.p.m.(3分測定)，脈は一般に最も低く，50～60 c.p.m. である。

註4) 医理学研究所製 D.C. 3型により，β線でした。片山により小容器の場合，390 カウンmin が U＝1 %に相当することが明らかにている。

記のものを多量[5]D.C.P. 1型放射線測定器（β線）から 10 cm の距離で放射能強度を測定した結果は，数を差し引いて 688 c/5 min で，すでに片山によ,000 c/5 min がほゞ U＝0.1 %に相当するといわれり，およそU含有量の見込は予想できた。

側の黄色部と内側の暗灰色部を手選して分離し，D. 型放射線測定器で，モナズ石と同様な条件で放射能を測定した結果は前者が 70 c/5 min，後者が 16 c/5 を示し，明瞭に前者が放射能異常の本源であるこ

第5表　Koechlinite のX線粉末回折表

(1)		(2)	
I	d	I	d
2	8.17	3	8.04
		1	3.74
10	3.14	10	3.14
2	2.96*		
5	2.73	6	2.73
		3	2.70
		1	2.58
1	2.49	1	2.48
4	1.933	6	1.926
3	1.649	6	1.654
		3	1.630
1	1.578	3	1.573
		1	1.528

1) 恵比寿鉱山　Cu/Ni
2) 真備鉱山，岡大大学，逸見助教授による資料
* 泡蒼鉛鉱の最も強い回折線にほゞ一致する
恵比寿鉱山の試料はこのほか，3 個について行ったが，ほゞ同じ果を得た。しかし試料によっては，泡蒼鉛鉱の他の線も相当混している。

ためX線螢光分析で各元素を調べると，Bi が圧倒的に多く，Mo をも多量に含む点から[7]，koechlinite を主成分とし，少量の泡蒼鉛鉱を含有するものと思われる。

暗灰色部をガイガーフレックスによりX線粉末回折像を得た結果[8]，および第6表分光分析の結果から，蒼鉛華を主として泡蒼鉛鉱を副成分とすることがわかる。

オートラジオグラフによる α 飛跡[9]の分布は，暗灰色部にはほとんど認められず，黄色部に多い。黄色部の2つの例は（細かい灰色部を含む）Tα＝0.065，および Tα＝0.070 で，U 1 %に対して Tα＝1.3[6] であるから，Uは 0.050 および 0.054 %でほゞ化学分析の数値と一致する。

鏡下で観察するとおよそ次の5種類に識別される。

（A）　無色―淡褐色，0.004 mm 以下の小結晶の集合

（B）　（A）より褐色味を帯び，淡褐色―褐色，0.004 mm 以下の小結晶の集合

（C）　無色―淡褐，針状，葉片状，長さは 0.01 mm 以上，（A）の無色と類似，

（D）　褐色―濃褐色，

（E）　赤褐色―黒色，ほとんど不透明，

いずれも屈折率は大きく，レターディションも（D）以外いずれもきわめて大きい。反射顕微鏡下では淡灰～灰色を呈する。内部反射は全部存在するが，反射光では，おのおのを識別することは困難である。しかし肉眼的に暗灰色を呈するもののうち，自然蒼鉛に接する方が灰色を呈し，さらに外側は淡灰色を呈してリング状に分布することがある。

肉眼的に黄色を呈する部分は（C）および（A）の無色のもので，灰―暗灰色を呈するものは（A）の淡褐色と，（B），（D）および（E）である。

第6表　暗灰色蒼鉛二次鉱物の分光分析結果

As	Sb	Bi	Ge	Ga	Au	Ag	Pb	Zn	Sn	Ni	Co	Cr	V	Mo	W
p.p.m. ~1000	tr.	main	—	—	—	p.p.m. ≫250	p.p.m. 100	p.p.m. 400	p.p.m. 400	—	—	—	—	p.p.m. >500	p.p.m. 500

分析：高橋　清

判明し，これを化学分析した結果はU＝0.052 %で

色部のX線粉末回折像を得た結果は第5表の通り異なった2つの試料はともに岡山県真備鉱山産 koeite (Bi_2O_3·MoO_3)[6] にほゞ一致する。これを念の

5）ガイガー管の窓に対する立体角より大きい範囲に，約 1 cm の厚さに並べて測定。

6）逸見吉之助，昭和 31 年 6 月鉱物学会講演

註7）　Ni が少量検出された。

註8）　蒼鉛華の最も強い線 3.23 Å が，常に最も強い線として現われるほか泡蒼鉛鉱の最も強い線，2.95 Å が3前後の強度で現われる点から，蒼鉛華を主成分とし，泡蒼鉛鉱を副成分とすることがわかつた。しかし，α＝3.12 Å，α＝2.39 Å の2つの不明の線が常に現われ，未解決である。

註9）　早瀬により 111 日 4 時間 40 分間，露出したものが得られた。

すでに述見註6)により，真備鉱山の蒼鉛鉱の酸化の場合，中心部から外に向かい，自然蒼鉛→蒼鉛華→泡蒼鉛鉱→koechlinite と変化することが認められており，koechlinite は恵比寿鉱山においても，蒼鉛鉱の二次鉱物のうちでの最終生成物である。

放射性物質がどんな形で蒼鉛の二次鉱物にはいつているかが問題となる。オートラジオグラフによるα飛跡の分布はこれらの鉱物のなかでは比較的一様であり，放射性の特に強い点源を発見できない点から，Bi を含む二次放射性鉱物である walpurgite[2)3)] (2 Bi_2O_3・UO_3・AS_2O_5 $3H_2O$) あるいは uranospherite (Bi_2O_3・$2UO_3$・$3H_2O$?) の存在は考えられない。P.B. Barton Gr[1)] によりアメリカ合衆国 Goodspring District, Nevada において 40 数箇所から，褐鉄鉱・hydrozincite ($ZnCO_3$・2 Zn $(OH)_2$)・crysocolla ($CuSiO_3$・$2H_2O$) 中にウランを含有することが確認され，それぞれ最高 U_3O_8 として 0.106, 0.239 および 0.16% を含有している。そして地下水中に溶解したウランは溶液中からコロイド物質のなかへと吸着され，それぞれ晶化して上記のような鉱物となつたとされている。恵比寿鉱山の koechlinite あるいは泡蒼鉛鉱も，地下水の作用により二次的に生成されたものであり，ウランの含有量も少量で，しかもα飛跡の一様な分布から，ウランを吸着したものと推定される。

このウランの本源については，早瀬により緑色グライゼン中の Tα=145 (瀝青ウラン鉱に匹敵する) を示す鉱物が確認されており，両盤に発達するグライゼンは少なくとも未変質花崗岩より，かなりウランを含んでいるので，主としてグライゼン中のウランから溶脱したと解釈される。

6. 結　論

恵比寿鉱山のようなタングステン—石英脈からモナズ石および放射性蒼鉛二次鉱物—koechlinite および泡蒼鉛鉱—が発見されたことは興味をひく問題である。苗木地方は種々の放射性鉱物の産地として有名であり，その周辺部にある。当鉱山と同様なタングステン鉱床は比較的多く，その後同様な例が福岡鉱山でも認められた

モナズ石は苗木地方砂鉱中のものに較べると，ト ム含有量は少なく，また石英脈中に発見された場所 きわめて小範囲ではあるが，肉眼的に確認されない 脈を採掘してもテイブル選鉱によつて常に濃集され 肉眼的に確認できる。トリウム資源と考えた場合タ ステン鉱の副産物としての回収は，一応今後の問題 ろう。

放射性蒼鉛鉱も常に選鉱場で認められる。蒼鉛は 理により回収されており，その精鉱がウランを含有 ことは確認されたが，元鉱のウラン含有量が低いこ ウランは吸着されていると推定されるため，機械的 が不可能である点から，資源的には重要とは現状で えられないが，このような鉱物がタングステン鉱山 出したという点では，興味をひくことである。

したがつて，苗木地方という特殊な地域的な考 で，その周辺部に存在する金属鉱床を調査すること 一つの基礎的な資料の蒐集という点で，今後続行す 要があると考えられる。　(昭和 30 年 3 月調査)

文　献

1) Barton, Gr. P. B.: Fixation of Uranium the Oxidized Base Metal Ores the Goodspring District, Econ. G Vol. 51, 1956

2) Erans, Jr. H. T.: Studies of Uranium M erals VI Walpurgite, Am. Min., 35, 1950

3) Fischer, E.: Identität von Walthrit und W purgin, Chemie der Erde, Hef Band 17, 1955

4) 柴田秀賢: 美濃国恵那郡苗木地方の花崗岩お ペグマタイト, 地質学雑誌, Vol No. 552～555, 1939

5) Winchell, A. N.: Element of Optical Mine ogy, Part II, 1951

6) Yagoda: Radioactive Measurement with clear Emulsions, New York, Wil 1949

553.495 : 553.463.063 (521.53) 535.82

岐阜県恵比寿鉱山母岩および鉱脈中の微粒放射性鉱物

早　瀬　一　一*

Minute Radioactive Minerals in the Quartz Vein and Wall Rocks of Ebisu Mine, Gifu Prefecture

By

Ichikazu Hayase

Abstract

The radioactivity distribution in rocks from the Ebisu tungsten mine was measured by means of autoradiographic method. Greisen was impregnated with radioactive elements, caused by such as biotite or ferruginous and manganous deposit with feeble radioactivity. One minute uraninite-like mineral was found in greisen.

要　旨

阜県恵比寿鉱山は苗木花崗岩の北西隅に位し，鉄マン重石・黄玉・錫石を産するグライゼン化作用を伴重石・石英脈鉱床からなり，これに伴なつて放射性の産出する可能性が強い。それで，こゝでは放射性に富む花崗岩と重石・石英脈の鉱化作用の間の放射質の挙動を，オートラジオグラフにより明らかにし試みた。

鉱床は花崗岩・石英斑岩・花崗斑岩を母岩とし，鉱近ではそのおのおのがグライゼン化を受けている母岩の薄片を用い，オートラジオグラフ用コンタ型乾板による4週間の密着露出の後，検鏡の結果次実を得た。

岩石中放射性物質は石英脈中から母岩のグライゼを受けた部分に多く，特に脈に接した部分に多く，離れると急に少なくなる。

グライゼン化を受けた花崗岩・石英斑岩中の放射質の分布にそれぞれ特徴があり，グライゼン化を受けでも源岩がわかることがある。

雲母類相互間の放射性物質の挙動が明らかになつ

1. 緒　言

地方は苗木石・恵那石・モナズ石等の放射性鉱物として産する。恵比寿鉱山はこの苗木型花崗岩の部にあたる北西隅に位し，鉄マンガン重石・黄玉・錫石等を産するが，これらに伴なつて放射性鉱物を産する可能性が多い。重石の選鉱過程における廃石および精鉱中に相当量の放射能を認めるのもこのためである。ここでは放射性物質に富む花崗岩と重石石英脈の鉱化作用の間の放射性物質の挙動を明らかにした。研究した方法は岩石薄片のオートラジオグラフによる放射能検出であり，限られた標本および顕微鏡下の限られた視野の範囲内では，見落された点も少なくないであろうが，その大要を述べよう。

なお，現地において種々御教示にあずかつた東京大学片山信夫教授，元所員三堀照夫氏ならびに恵比寿鉱業所長山田宗璋氏に深謝の意を表する。

2. 方　法

カバーグラスをかけない岩石薄片を用い，オートラジオグラフ用コンタクト型乾板を使用して密着露出した。露出時間はすべて4週間行い，概査検鏡の結果さらに露出を加減することにより，鏡下でαトラックを数えるに適当な乾板を得た。岩石薄片中でみられるような1mm以下の微粒放射性鉱物では，ジルコンで2週間から4週間，モナズ石で1週間，エナ石で1日間の露出が適当である。岩石薄片の表面は平らに研磨されたものをさらによく水洗することが必要である。これはエナ石のような軟らかで強放射性の鉱物があるとき，研磨作業の途中で黒雲母の間等に挟まれるおそれがあり，この結果機械的な放射能汚染をもたらすからである。乾板の現像処理はその目的によつて早目に切り上げたり押したりする。高倍率でαトラックを数える場合には，現像時間を

*資源調査所調査員，京都大学助教授

短かくした方がバックグラウンドの銀粒子が少ないため都合がよい。概査の目的で放射性鉱物による active center をさがすには，薄片と乾板を露出時と同じ位置に重ね合せて，鏡下で 60～100 倍で走査するが，この場合には乾板はできるだけ現像を押してはつきりしたαトラックを得ることが望ましい。みつかつた active center には乾板の裏にスタンプ式のマルキュルアパラートその他で印をつけるか，顕微鏡のメカニカルステージの目盛によつてその位置を確かめておく。くわしく検鏡するには乾板のみにて約 1,000 倍で浸液系の対物レンズを用いるのがよい。この場合にはまず低倍率で位置を確かめる必要上，対物レンズがレボルバー式のものが便利である。鏡下で薄片中の active center をさがすときはジルコンやモナズ石のような高屈折率の微粒副成分鉱物や多色性ハロが手がかりになるが黒色不透明鉱物の場合は見落すおそれが多い。特にこの点は coating method や stripping method によるオートラジオグラフの場合には不都合である。薄片と乾板を重ね合わせるのに，鏡下において多少ずらせて検鏡することにより，この目的を達することができる。鉱物中における微細な放射能分布を精密に知るには，接眼鏡中に適当の大きさの正方形のスリットを設け，メカニカルステージの移動によりこの視野を前後左右にいくつも繰り返すことにより測定の目的を達する。後に述べる黒雲母等の放射能分布は，約 1,200 倍で視野 55 μ 正方のものを繰り返し移動して測定した。

鉱物中の放射性物質が Th であるか U であるかを定性的に判別する方法は次の通りである。

（1） 45 μ 以上の α トラック（RaC′ より長いもの）がある場合は Th が相当多いと考えられる。この場合総 α トラック数は数百本である必要があり，長いトラックは数本にすぎない。全部の α トラックを 1 本づゝ長さをはかり，その割合を出せば Th と U の含有量の比が定量できるが，著しく手数のかゝることである。

（2） 50 μ 以上の膜の厚さをもつ乾板を使用した場合には，垂直に長い（定着処理の結果，臭化銀を溶かし出すので処理後は膜の厚さは薄くなる）20 μ 以上の α トラックが多い場合も Th の割合が多い証拠である。

（3） 雲母に多色性ハロがみられる場合は，その大きさにより（半径またはハロの幅）Th 鉱物であれば 41 μ の ThC′ ハロを，U 鉱物であれば 32 μ の RaC′ ハロをもつ。

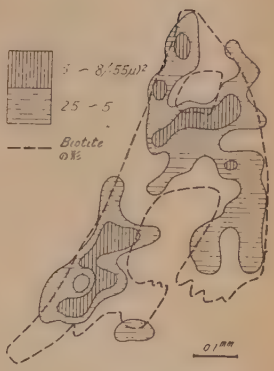
3. 花崗岩中の微粒放射性鉱物

恵比寿鉱山ではまつたく新鮮で変化を受けていない花崗岩はみられないが，湊山坑 C2, C5 等註1) は比較的グライゼン化の少ないものであろう。これらの花崗岩は普方に広くみられるものと同じく，しばしば uranoth程度の強放射性微粒鉱物を含み，またジルコン・モ石程度の放射能のものも多数含有する。C2 におい黒雲母中に多色性ハロをつくるもの，長石・石英のあるものなど種々あり，ジルコン・モナズ石程度の能のものでは，$T\alpha$=0.53, 0.91, 1.02, 1.17, 1.77, 1.80, 1.82, 2.75, 3.08, 5.44 等あり，最最も強放射性の鉱物が石英中にある以外はすべて母，または白雲母中にある（こゝに $T\alpha$ の値と U の含有量の関係は鉱物中に U 1 %に対して，$T\alpha$= Th 1 %に対して $T\alpha$=0.4 の放射能に相当する[2]つきりした結晶形からジルコンとかモナズ石と判ものもあるが，わからない場合も多い。以上のよう射能的傾向は，C5 にもみられ，特に黒雲母より白の多い部分に微粒放射性鉱物が多い傾向がある。0.59, 1.00, 1.37, 2.96, 3.20 等種々の程度の放を示す。この花崗岩の黒雲母はかなり強い放射能す。第 1 図はこのうちの一片の黒雲母の放射能分（露出 28 日，総トラック数 1,342 本）で放射能は不であるが，平均して $T\alpha$=0.077 である。こゝにみるものには黒雲母中に特に著しい active center がこと，放射性物質の不均一性が著しいこと，特にまた接する主成分鉱物が石英か正長石かにより放射能の差みられ，石英側に少なくて正長石側に多い傾向にあまた黒雲母の周辺部に多く中心部に少ない点から，性物質が二次的に沈殿した可能性が強い。第 2 図はの黒雲母で総トラック数 250 本で $T\alpha$=0.050 であ雲母中に褐色のしみのある部分に放射能が強く，に含まれる石英白雲母の部分にまつたくない。この も不均一であり，また外部から二次的に放射性物質殿したものとみられる。第 3 図も総トラック数 23$T\alpha$=0.038 を示す。放射性物質の沈殿は黒雲母の片方向に関係があるらしい。以上 3 つの黒雲母は同一中のもので放射能がそれぞれ異なつた値を示す。まの通り各個体中でもきわめて不均質である。これとのことは田ノ上山花崗岩の接触部に近い部分に局部発達している[1]。

C1（湊山坑）花崗岩では第 4 図のような放射能分示す黒雲母がみられる。中心部は褐色で放射能をず，周辺部の緑色部にのみこれがみられる。図は黒の概形とその放射能によつてできたαトラックの分

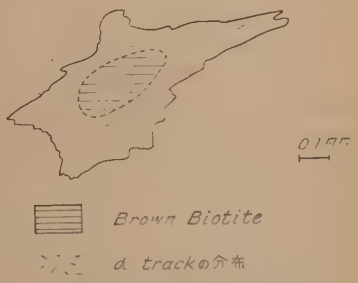
註1) C2, C5 などの標本番号は片山信夫による調それと同一である。

第 1 図　C5 花崗岩中の黒雲母の放射能分布図（28 日露出）



第 2 図　C5 花崗岩中の黒雲母の放射能分布図（28 日露出）

図　C5 花崗岩中の黒雲母の放射能分布図（28 日露出）



第 4 図　周辺部が緑色の黒雲母中の放射能分布

たものである．この花崗岩では黒雲母中に Th ハ
つ黄褐色の鉱物があり　$T\alpha$=5.97, 7.23, 8.50,
である。α トラックの分布より，これらの鉱物は
の造岩鉱物より軟かく凹んでいることがわかる。
英中に完全なメタミクトの鉱物で $T\alpha$=18.8 のも
ジルコン・モナズ石程度の放射能（$T\alpha$=0.87,
鉱物粒がある。C22（湊山坑三番坑三号鏈）花崗
黒雲母の一部が褐色化して放射能があり，C11（湊
から 102 m 軟花崗岩）も他の花崗岩と同じく石
石・雲母いずれの造岩鉱物中にも放射性微粒鉱物
C28（湊山坑三番坑三号鏈東引立）は多少斑状を
外は他の花崗岩と同じであり，花崗岩の周辺相を

示すものである。

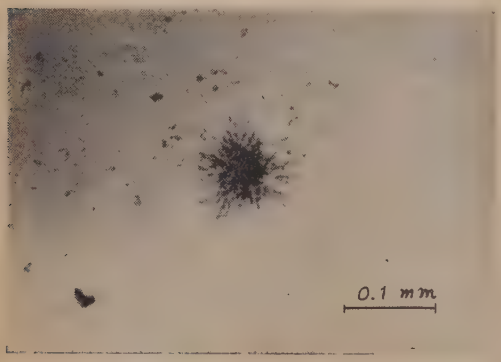
4. グライゼン

花崗岩のグライゼン化を受けたものは，黒雲母自身のなかに始めから残つている微粒放射性鉱物の存在や，花崗岩質構造の残つていることから，石英斑岩のそれと区別できる。黒雲母中に微粒放射性鉱物が多数あることや，黒雲母自身の一部が褐色ないし黒色に変化して放射能をもつていることは，前項の花崗岩のところで述べた通りである。この種の岩石もグライゼン化作用を強く受けたとはいえ，受けない花崗岩と同じく石英や曹長石質斜長石のなかに強放射能の微粒鉱物をしばしば含む。C4（湊山坑口近く）はグライゼン化した花崗岩で，見掛け上赤褐色をしたものである。

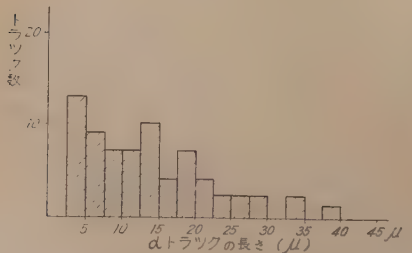
この岩石で特に注目すべきことは，岩石の割れ目にそ

つた鉄マンガン質の沈殿物に放射能のあることである。この沈殿物がやゝ集中しているところでは $T\alpha=0.24$ に及ぶ。黒雲母も部分的には褐色化し，さらに黒化している場合が多く，細脈状の沈殿物であるか，黒雲母の変化物であるか，鏡下では形態のうえ以外では区別しにくい。この岩石中の黒雲母の放射能は，$T\alpha=0.019$，0.023，0.029，0.039 の値を示し，赤褐色の錆色が著しくなるにつれて，放射性物質の沈殿も進んでいる。石英にかこまれた雲母質物質の塊で，鉄マンガン質沈殿物の充填されているものでは $T\alpha=0.058$ を示す。微粒鉱物では花崗岩と同じく石英中に $T\alpha=20.2$ の強放射性鉱物があり黒化している。黒雲母中には $T\alpha=1.46$，3.35 等ジルコン・モナズ石に相当する射放能の鉱物が多くみられる。

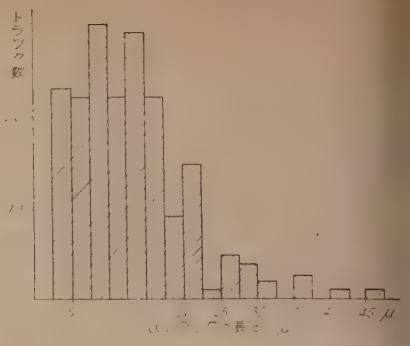
C6(湊山坑口から 75 m)は硬い青色の岩石で花崗岩のグライゼン化を受けた新鮮な岩石である。微粒放射性鉱物がきわめて多く，白雲母に伴なうものが多い。$T\alpha=5.14$，6.70，11.1，11.6，18.0，20.8 等でモナズ石からエナ石程度の放射能の鉱物粒が多い。これらの鉱物は強放射能のものではメタミクト状の光学性を示すか黄褐色のシミまたは雲母物質からなるハロをもつている。C7(湊山二号坑右へ 10 m 南側)も C6 と同じような岩石であり，黒雲母・白雲母中に微粒放射性鉱物を多く含む。いずれも Th ハロをもつ $T\alpha=16.3$，33.8，35.6 の放



図版 1 エナ石の 28 日露出 (C7)

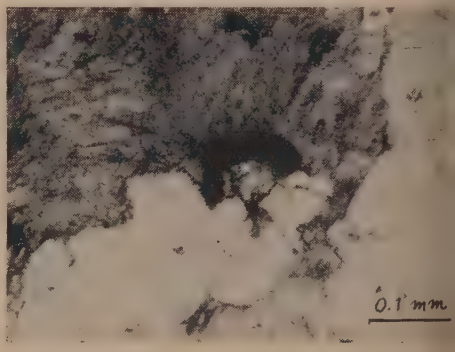


第 5 図 C7 中のエナ石による α トラックの長さの割合

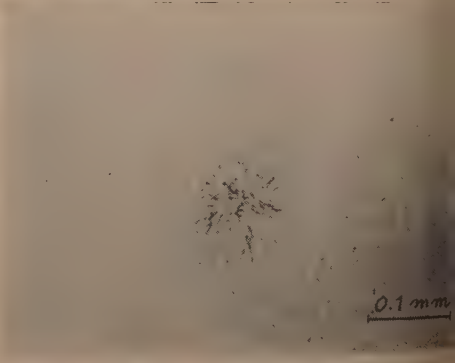


第 6 図 C7 中のエナ石による α トラックの長さの割合

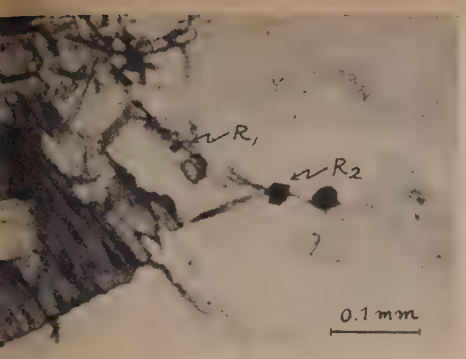
射能をもつ。図版 1 はエナ石の 28 日露出によるラジオグラフである。この種の強放射性鉱物二粒て α トラック数とそれぞれの長さの分布を測定ころ第 5.6 図を得た(5 日露出，第 5 図は 70 本，は 190 本の α トラック)。いずれも長い α トラッが比較的多く，Th の含有量が比較的多いことをいる。このことは図版 2 のように Th ハロをもつ点からも当然のことである。最も放射能の顕著なC6 の石英中に含まれる正方形に近い微粒の黒色



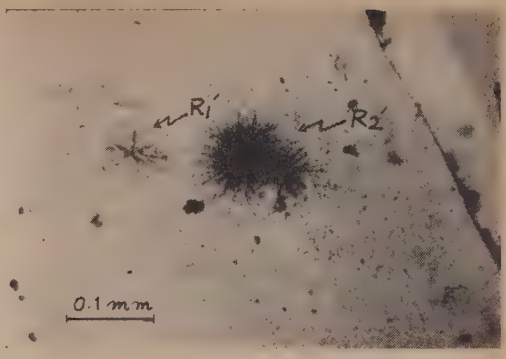
図版 2 a エナ石とトリウムハロ (C7)
鉱物のまわりに黄色ハロがありさらに Th ハロがかこむ



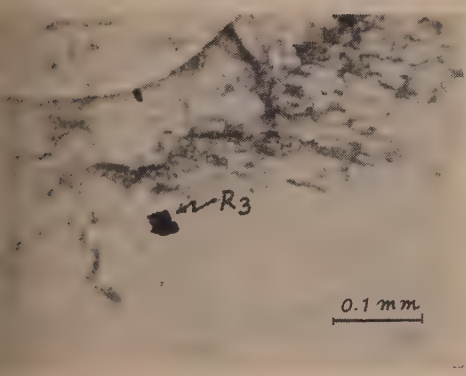
図版 2 b a の鉱物の 4 月 21 時間露出



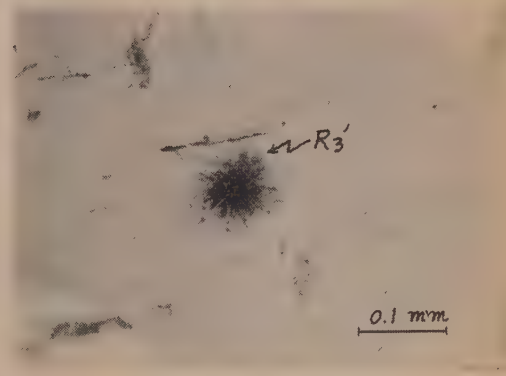
a



a'



b



b'

図版 3　岩石中の Uraninite

a　瀬戸雲興寺石切場花崗岩中　　a'　a の 28 日露出オートラジオグラフ
b　エビス鉱山湊山坑 C6 グライゼン中　　b'　b の 28 日露出オートラジオグラフ
R_1……$T\alpha$=147　　R_2……$T\alpha$=179　　R_3……$T\alpha$=145

$T\alpha$=145 で図版 3 に示す通り 28 日露出で著しいネズミ状の α トラックが得られる　このようなもの崗岩中にもまれにはみられるもので田ノ上山花崗瀬戸花崗岩で各一例を得た。たゞしこの放射能の値145 は 23.5 μ×27 μ のような微粒のものの薄片中するものであるから，α 線の透過飛程を考慮に入れると，実際にはもつと大きい値の可能性が多い。第 1 表はこれらの鉱物の放射能を Yagoda[2] の値と比較したものである。C24，C23（湊山坑三番坑二号鏈）はエナ石程度の強放射能の鉱物があり，C5 と同じく緑色の黒雲母にやゝ放射能が認められる。

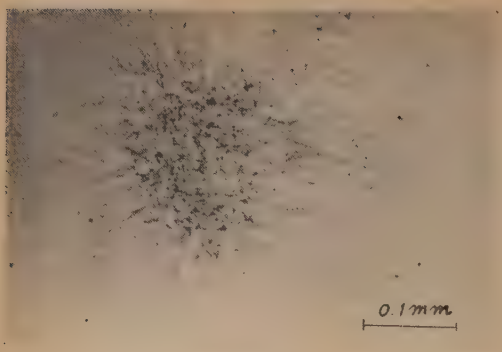
第 1 表　黒色不透明鉱物の強放射能

物　名	放射能 $T\alpha$（研磨面 1cm² 当り毎秒の α 粒子の射される数）
ninite	215—160
ggerite	170—160
eite	176
ablende	186 -140
rianite	111 - 76
雲興寺花崗岩中	
A	179
B	147
寿，グライゼン C6中	145

5. 石英脈

C30（本山坑）は比較的強い放射能をもつた微粒鉱物が少数みられる。α トラックの分布は石英質の部分に少なく，雲母質の部分に多い。特に雲母が緑色ないし暗色である場合に放射性を帯びる　緑色雲母に伴なわれる微粒鉱物で $T\alpha$=1.17 のものがあり，磁鉄鉱粒に伴なうエナ石程度の強放射能鉱物もみられる。

石英脈と石英斑岩のグライゼン化した部分との間の放射能分布の明瞭にみられるのは C17（本山坑 13 m 坑二号鏈）である。石英脈の石英部分には微粒の弱放射性鉱物が，僅かに認められるのみで岩石全体の放射能はきわめて低い。一方界を接するグライゼンの部分には，やゝ



a b

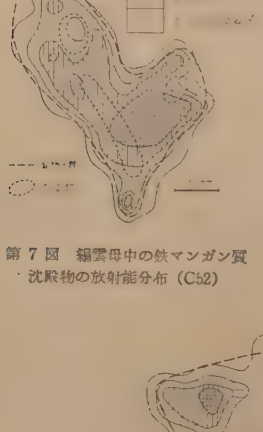
図版 4 C40 中のモナズ石とそのオートラジオグラフの 28 日間露出

放射能の強いモナズ石程度の $T\alpha$=2.0, 2.06, 2.68 の鉱物がある。グライゼン中で石英脈に近い部分に，このような鉱物が特に集中している。これは石英脈の貫入によつて母岩の放射性物質を増すことを示すものである。

C3 (湊山坑) 石英脈は，石英中にはまつたく放射能がなく，白雲母の集合しているところにはやゝ放射能がある。多分次の C52 の例にみられるような，白雲母の集合に伴なう鉄マンガン質物質の微細なものが散点

めであろう。

C52 (湊山坑三号鑓，0 m) は絹雲母化石英脈で，英間の絹雲母に随伴して黒色不透明 (一部分は赤褐明) の鉄マンガン質沈殿物があり，$T\alpha$=0.32 (第トラック数 686 本), $T\alpha$=0.23 (第 8 図総トラック数本) がみられる。さらに細かいものでは $T\alpha$=0.41, 1.03 等があり，放射能は一定していない。最後の 1.03 のものは既存の放射性鉱物の黒化によるもたがいがある。いずれの場合でも図にみられる通わめて不均質な放射能分布を示す。このほか石英中ナ石程度の強放射能の微粒鉱物が存在するが，二次黒化している。



第 7 図 絹雲母中の鉄マンガン質沈殿物の放射能分布 (C52)

6. 花崗斑岩

本来石英斑岩と同質の岩石であるが，本山坑には結晶が進んでいるために湊山坑の石英斑岩と区る。C42 (本山坑地並) の花崗斑岩中の黒雲母塊のな

第 8 図 絹雲母中の鉄マンガン質沈殿物の放射能分布 (C52)

粒の大きい(顕微鏡的にいつて大きいので 40～50 μ のもの) モナズ石程度の放射能の鉱物が数個ある。本山坑地並)も同じでモナズ石の結晶がみられる(図 。C32(本山坑)も同じである。C33(本山坑地並)はズ石級の放射能をもつ微粒鉱物のほかに，赤橙色の射能をもつ微粒鉱物を含む。C39 (本山坑地並)は黒の塊そのものが放射能をもち，$T\alpha$=0.5 程度であこの黒雲母の塊のなかに，ジルコン・モナズ石がみるのは C38, C37 も同様である。全般的にみて，坑の石英斑岩よりも本山坑の花崗斑岩の方が微粒副鉱物の粒が大きく，また数も多い傾向にある。特にの影響を著しく受けたと思われる例 C41 では，黒の結晶も大きく，数も多い。C34 も同様のものであ 石基中に長方形の不透明な黒色物質があり，$T\alpha$ 6 を示す。α トラックのうちに ThC′ に相当するが認められる結果，放射能は大部分 Th 系のものとられる。

(本山坑 13 m 坑二号鏈)の細粒花崗斑岩では，放微粒鉱物がやゝ多くみられ，$T\alpha$=0.79, 1.40, 2.30, 等でジルコンやモナズ石に相当する。

7. 石英斑岩

英斑岩または石英斑岩中のホルンフェルスでは，花の影響で淡緑色黒雲母集合があり，このものに限り性微粒鉱物を含む。およそジルコン・モナズ石程度射能で，特に強いものはみられない。C12, C13 が例である。こゝで面白いのは C12 (湊山坑) は石英(C13 湊山坑) 中のホルンフェルス捕獲岩に近い部り，石英斑岩のホルンフェルスに対する接触部に微粒鉱物が多い。C13 は微粒放射性鉱物が少なく，褐色黒雲母の集合した部分があるものではこの傾向。このような褐色黒雲母の集合の例は，C18 (本13 m 坑二号鏈) の斑晶の大きい石英斑岩にもみらはり放射能も低く微粒放射性鉱物も少ない。この雲母の集合が緑色になり，放射能をもつことは花影響によるものである。

(湊山坑四号鏈西引立) は肉眼でも鏡下でも完全なフェルスで放射能も弱く，微粒放射性鉱物も少な雲母は褐色であり花崗岩の影響が少ない。

(湊山三番坑三号鏈) は比較的新鮮な石英斑岩でが，やはりグライゼン化を受け白雲母の多い部分に微粒放射性鉱物が散点しており，塵状によごれた特に放射能が集中している。しかし岩石全体として射能が弱い。同様のことが C27 (C29 の近く) にれる。

斑岩で結晶が進み，花崗斑岩ともいうべきものまで種々あるが，グライゼン化の影響を受けない限り放射能は弱い。淡緑色の黒雲母集合のところに限り，放射能が集中している。なかには淡緑色の黒雲母集合に多色性ハロと同効果の暗黒色化により，全体が暗黒色の場合さえみられる。C16 (本山 13 m 坑二号鏈)，C19 (同じ)，C36 (本山坑地並) では皆同様の放射能的傾向を示し，結晶間隙の黒雲母の集合部に放射能が集まる。

C48 (湊山坑四号坑西引立) ではホルンフェルスと石英斑岩の接触部 (花崗岩貫入以前の石英斑岩の接触) がみられるが，両岩種の間に放射能の差は認められない。

8. 花崗岩と石英斑岩の接触部

C50 (湊山坑四号坑西引立) は花崗岩と石英斑岩の接触部であり，放射性物質の分布が明瞭にみられる。両岩種の界に沿い，花崗岩中においては強放射性の微粒鉱物 (モナズ石・エナ石級のもの) が集中するが，必ず黒雲母に伴なわれるもので，微粒で 20～30 μ 以下である。黒雲母も緑色―暗緑色のものが多く，これ自身も放射能をもつ。これに対して石英斑岩は花崗岩の影響を受けたためにできた黒雲母の集合物に放射能がある。この集合物中に微粒な放射能鉱物もみられるが，花崗岩中におけるほど著しくない。石英斑岩中の放射性物質集合は，接触部をはなれると急に少なくなる。やゝ離れた点では黒雲母集合は緑色より褐色の新鮮なものに変わる。

C48 (接触部より約 1 m) ではジルコンやモナズ石様微粒鉱物が石英斑岩としては多いが，黒雲母には伴なわないで石英・長石の間に存在する。この種の放射性物質は黒雲母に伴なう接触部附近のものと異なり，さらに早期にできたものであろう。

9. 結　論

1. グライゼン化に伴ない放射性物質の沈殿が行われる。

2. 岩石中放射性物質は石英脈中より母岩のグライゼン化の部分に多く，特に脈に接した部分に多く，脈を離れると急に少なくなる。

3. グライゼン化を受けた花崗岩・石英斑岩のなかの放射性元素の分布に，それぞれ特徴があり，グライゼン化を受けた後でも源岩がわかることがある。

4. 褐色黒雲母―緑色黒雲母―淡緑色黒雲母―白雲母と変化するにしたがつて，雲母中の放射能が増加してまた減少する。褐色黒雲母や緑色黒雲母にはジルコン，その他の微粒鉱物が多いが，白雲母ではモナズ石に限られる。

5. 黒雲母がグライゼン化その他の鉱化作用により，緑色化，褐色化 (褐鉄鉱質の沈殿による) が進むと放射能

に強くなるが，なかの放射性包有物は少なくなる傾向がある．

文 献

1) Hayase, I.: The Radioactivity of Rocks and Minerals Studied with Nuclear Emulsion, III, Mem. Coll. Sci. Ui Kyoto, Ser. B, Vol. 22, 1955

2) Yagoda, H.: Radioactive Measurements Nuclear Emulsions, New Yo Willey, 1949

553.495.068 : 550.83 (521.53)

岐阜県苗木地方物理探査報告

佐野 浚一* 斎藤友三郎* 畑瀬 安彦*

Geophysical Prospecting at Placer Deposits in Naégi Region, Gifu Prefecture

By

Shun'ichi Sano, Tomosaburō Saitō & Yasuhiko Hatase

Abstract

Radiometric and magnetic survey for placer deposits in "Naégi" region were carried out at Kōketsu-yama and Nishi-obara in Fukuoka village, Ena county, Gifu prefecture.

The distributions of radioactivity at the ground surface and in drill holes as well as distribution of vertical magnetic forces were measured, but no remarkable anomalies were discovered. According to the results of geologic and mineralogical studies, there are no economic concentrations of radioactive minerals. However, the radioactivity of the placer deposits varies with the mineral constitutions. Therefore, the geophysical methods applied may be useful to radioactive placer deposits in general.

要 旨

県苗木地方における放射性鉱物を含む漂砂鉱床の
して，恵那郡福岡村交告山および西大洞において
探査および磁気探査を実施した。
放射能強度分布・孔内放射能強度分布を測定した
雲母花崗岩の放射能強度より高い値は測定されな
。前回調査した中津川市(苗木町)ロクガホッタ地
ける測定結果をも含めて，放射能強度の分布は地
学的事実と一致する。
は鉛直磁力分布をも測定したが，著しい異常は認
なかつた。

1. 緒 言

30年度核原料物質探査事業の一部として，前年
続き岐阜県苗木地方に散在する漂砂鉱床の調査が
れた。昭和30年8月，筆者らは恵那郡福岡村交
よび西大洞において，放射能探査および磁気探査
た。当地方における漂砂鉱床の調査は今回で一応
なつたので，前年度の調査結果と比較しながら，
調査結果を報告する。位置および交通・地質・鉱
いては同時に実施された浜地忠男らによる鉱床調
告[2]を参照されたい。

2. 地表放射能強度分布

測定器および測定方法

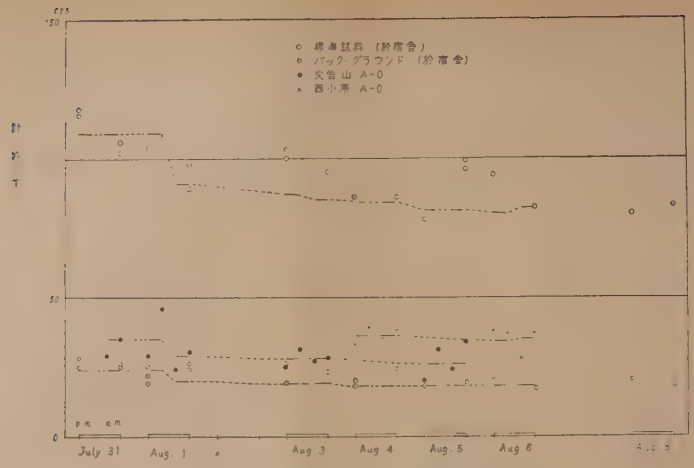
本調査には Canadian Aviation Electronics Ltd. 製 Model 963 Scintillometer[5]を使用した。この測定器は携帯用シンチレーション・カウンターで，指度および零点の変動が認められる。零点の変動は測定ごとに更正した。1回の測定に際しては時定数を8 sec註1)として 15

第1図 位置図
Areas surveyed

sec 置きに10回読取り，平均値をもつて測定値とした。調査期間中，宿舎において朝夕較正用試料 (Ra 約4 μc)

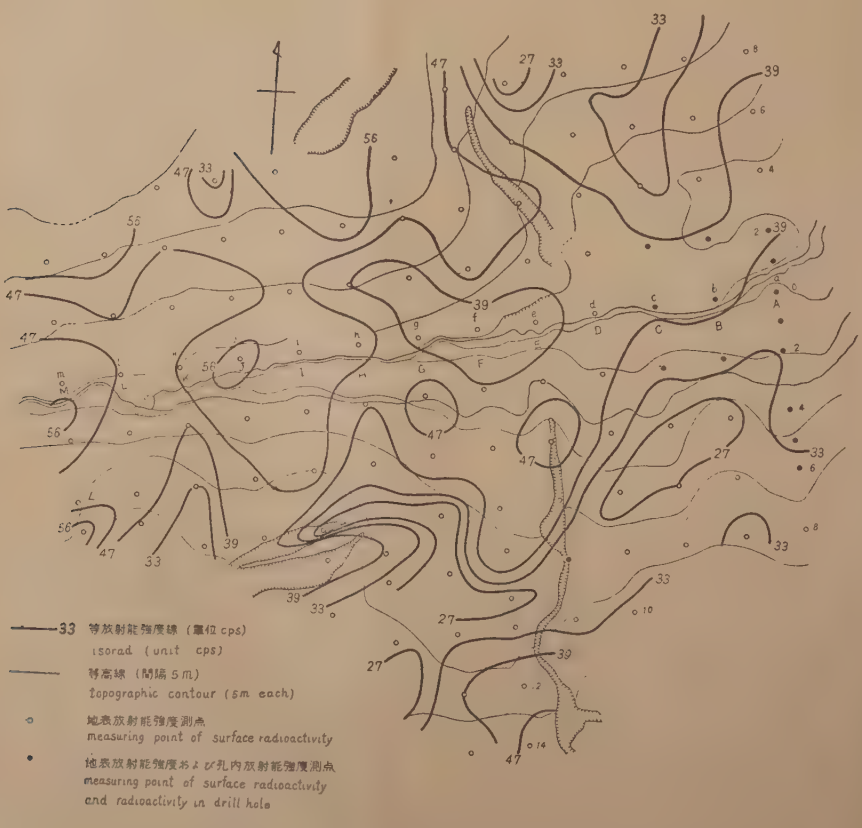
註1) 8 sec は器械に標示されている時定数で，通常の時定数の定義によると 3.3 sec になる。

*探査部



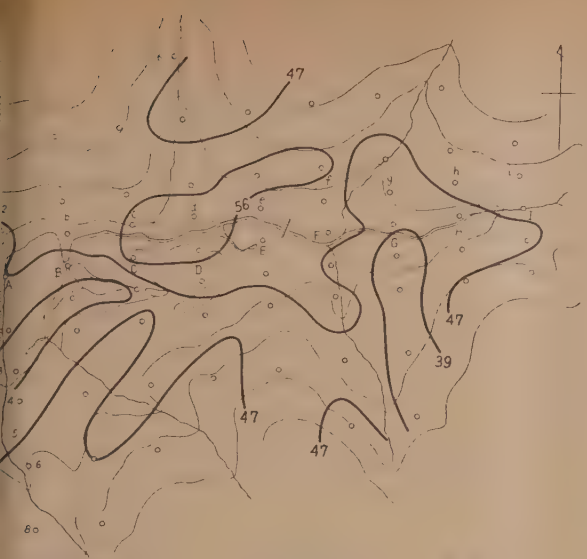
第 2 図 Model 963 Scintillometer の指度変動

Long time variation of the sensitivity of Model 963 Scintillometer



第 3 図 苗木交告山地区地表放射能強度分布

Distribution of the surface radioactivity at Kōketsu-yama, Naégi region



第4図　苗木西大洞地区地表放射能強度分布

tribution of the surface radioactivity at Nishi-obara, Naégi region

計数値およびバックグラウンドを測定し，さらに域内に一点において測定を繰り返し，これらの計

第　1　表

	測定期間 (days)	測定回数	平均値 (cps)	分散 σ (cps)	分散 σ/(mean) (%)
用試料	6	17	115	10.0	8.7
ックグンド	6	18	26	3.0	11.3
O	4	18	35	5.5	12.8

長期変動を求めた。その結果は第2図に示しの結果を用いて各測点における測定値を補正補正された計数値の分散は，第1表に示すよ均値の10％前後である。実測された分散は，変動から期待される値(2～3％)より大きい。は鉱床調査のため設定されたものを利用した査期間の都合で測点間隔を 20 m とした。

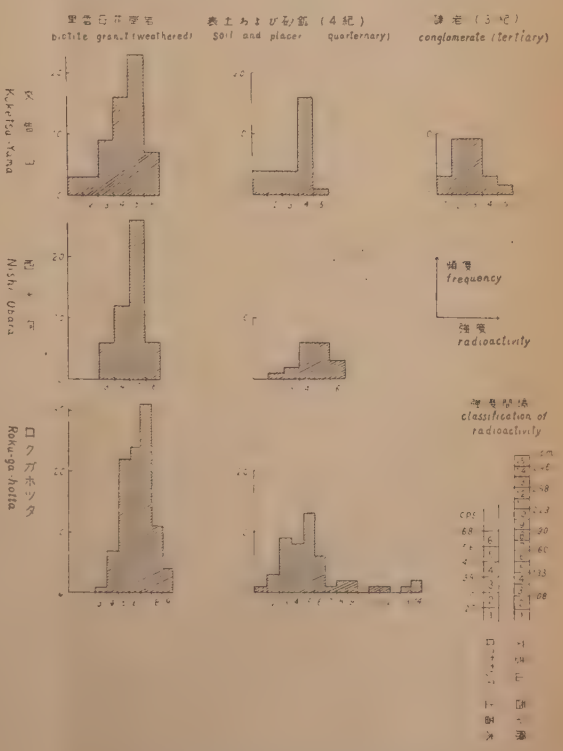
測定結果

能強度分布図を第3・4図に示した。等放射線の間隔は実測された分散が10％であるこ慮して，各線の中間の計数値の20％となるした。前年度調査したロクガホッタ地区と同黒雲母花崗岩の分布する地域の放射能強度が，交告山地区では第三紀の礫岩が露出していの地域では強度が低いことが認められる。

次に地質分類別[2]の放射能強度頻度分布を第5図に示した。ロクガホッタ地区における頻度分布をも添えた。ロクガホッタ地区において使用した測定器は，今回使用したものと異なるので，2つの測定器を同一測点に置いて測定した結果に基づいて横軸(強度軸)を対応させた。またロクガホッタ地区における地質分類の方法[6]は，今回のそれと異なるので下記のように対応するものとした。

交告山・西大洞	ロクガホッタ
表土および砂鉱	表土・黒色腐植土・湿地・鉱床
黒雲母花崗岩	黒雲母花崗岩・サバ

各地区とも各地質分類に対してほゞ同様な放射能強度を示している。各地区を通じて黒雲母花崗岩の放射能強度が高い。こゝで黒雲母花崗岩と称するものは，各地区とも風化した露出とサバ(花崗岩の分解による砂)であつて，新鮮な露出はほとんどみられない。苗木地方の黒雲母花崗岩の新鮮な露出で測定した値は風化した場合の値より大きい。第2表は風化による放射能強度の変化を示したもので，風化分類別に平均値



第5図　地表放射能強度の地質別頻度分布

Frequency distributions of the surface radioactivities

第 2 表

測定地点			測定点数	平均値		分散	
				測定値	換算値* (cps)	σ (cps)	σ/(mean) (%)
ロクガホッタ	黒雲母花崗岩	新鮮	11	159 cpm		13.1 cpm	8.2
		風化	32	134 〃		13.6 〃	10.1
		礫を含むサバ	34	120 〃		19.4 〃	16.2
		礫を含まないサバ	29	119 〃		13.2 〃	11.1
		総計	106	128 〃		17.9 〃	13.9
交吉山西大洞	黒雲母花崗岩		57	46 cps	118	8.1 cps	18.0
	第三紀層礫岩		25	34 〃	95	6.4 〃	18.9
	黒雲母花崗岩		50	48 〃	120	6.9 〃	14.4

* ロクガホッタ地区と同一測定器を使用した場合に換算した値

と，それに対する分散を掲げてある。

第三紀の礫岩は交吉山地区に露出しているだけであるが，その放射能強度はこの地域の岩石のうちで最も低い。

表土および砂鉱の放射能強度は，一般に黒雲母花崗岩と第三紀礫岩との中間に分布する。

ロクガホッタ地区では川の砂の上で，黒雲母花崗岩よりかなり高い放射能強度を示す場所が認められたが，交吉山・西大洞地区ではこのような場所は認められなかった。

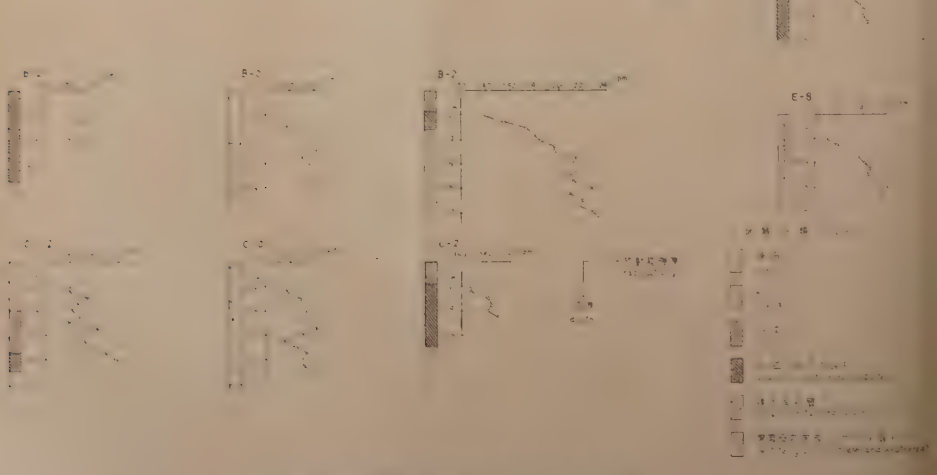
西大洞地区における砂鉱の放射能強度は，比較的また狭い頻度分布を示す。このことは（1）本地鉱は全部黒雲母花崗岩から供給されたものである（2）他地区の砂鉱は第三紀層ないし石英斑岩から[illegible]れた物質をも含むこと[1)2)]，（3）他地区において母花崗岩ないし他の岩石が風化分解して，すでに質をも含む表土となつたものが存在すること[1)]，よつて説明することができる。

3. 孔内放射能強度分布

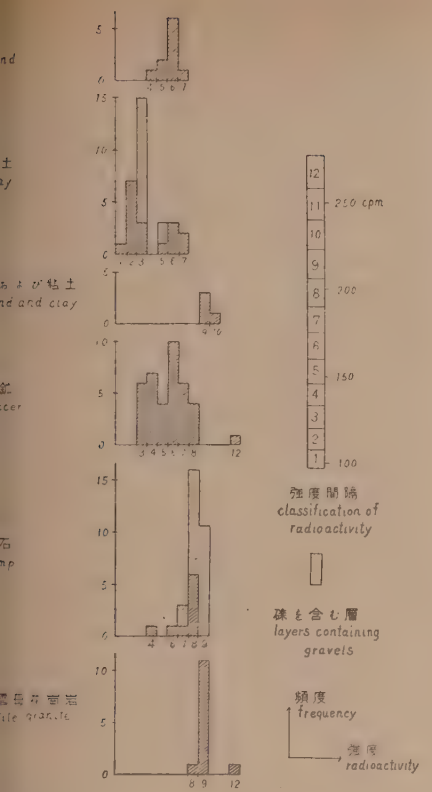
3.1 測定器および測定方法

地表放射能強度分布から，表土に覆われている存在を推定することは困難である。したがつて，地区において第四紀層(表土ないし砂鉱)で覆われ14測点と，第三紀層で覆われている1測点とに[illegible]ハンド・オーガーによつて鉛直に深さ 1.5～0.5を掘り，深さ 0.2 m 以下の所で 5 cm ないし隔で放射能強度を測定した。

測定器は科研製 γ 線用 GBLIT 型 G-M 計数研製 SU-P1 型サーベイメーター[4)]に結合したる。孔の直径は G-M 計数管のプローブ（外径が自由に動くことができる程度で，ほぼ一様に掘ができた。1回の測定に際しては，時定数を 1し，30 sec 置きに 10 回読取り，平均値を求め，値にレートメーターの非直線性[4)]を補正した値を測定値とした。この測定器による測定誤差は，放



第 6 図 孔内放射能強度分布（交吉山）
Radioactivity logs in the drill holes at Kōketsu-yama



第7図　孔内放射能強度の地質別頻度分布
Frequency distributions of the radioactivities in drill holes

変動による誤差だけからなると考えてさしつかえ

測定結果

図は孔内放射能強度分布である。地質柱状図は，男らによつて測点附近において行われた試験掘の果によつて作られた[2]。深度決定の誤差，地層の向の不均一性などのため，孔内の深度と柱状図の間に，±5 cm 程度の相違があることは免れなわれる。

放射能強度には表土の吸収による宇宙線のバックラウンドの変化の影響があるが，その影響は無視ものとした。

図は地質分類別の頻度分布である。交告山地ではおいても，黒雲母花崗岩より遙かに高い放射能強められなかつた。こゝの砂鉱には錫石の濃集が認，地質分類中の“廃石”は数10年前に砂錫が稼たとき粗選鉱によつて捨てられた部分である[2]。区の砂鉱の放射性鉱物の含有率はロクガホッタ地較して数分の1程度[2]であつて，核原料物質資源としての経済的価値は認められない。

4. 地表鉛直磁力分布

4.1 測定器および測定方法

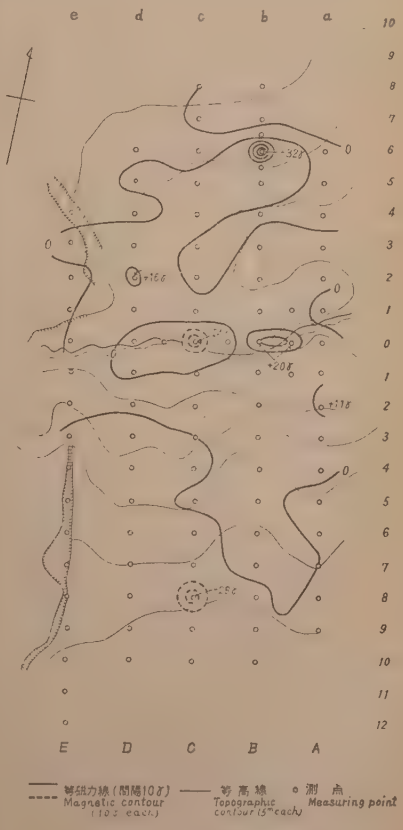
苗木地区の漂砂鉱床には砂鉄を含有することが知られているので[1][3]，交告山地区において地表鉛直磁力分布の調査を実施した。

使用した測定器は Askania Werke A.G. 製 Gf 6 型鉛直磁力計であつて，目盛常数は 10.4 γ/scale division，実際の観測精度は±1.5 γ であつた。地磁気の日変化の影響は調査地域附近の黒雲母花崗岩の露出上で，1日4回宛測定した値に基づいて補正した。

測点は鉱床調査のため設定されたものを利用し，比較的広く第四紀層で覆われた地域，およびその附近だけを測定した。また多少異常の認められた測点の附近では，既設の測点の中間に補助測点を設けた。

4.2 測定結果

第8図は地表鉛直磁力分布である。大部分の地域は10 γ 程度の変化を示し，きわめて局所的に±30 γ 程度



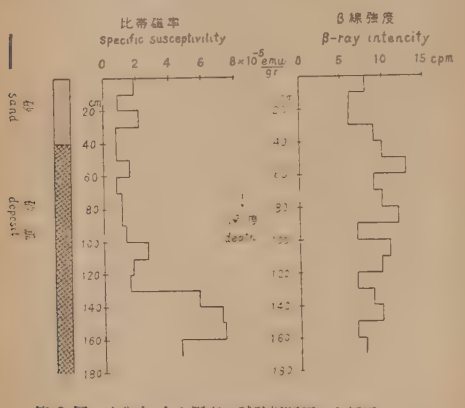
第8図　苗木交告山地区垂直磁力分布図
Distribution of the vertical magnetic forces at Kōketsu-yama, Naégi region

の異常を示すが，地質分布とも明らかな関係はないように思われる。

砂鉱が表上で覆われている所でも，その深さは 1～2 m にすぎないので，この地区の砂鉱中には著しい砂鉄の濃集は認められないと考えられる。

5. 試料の磁性と放射性

地表鉛直磁力分布の測定だけでは，前述のように砂鉄の濃集に関して充分な試料が得られなかつたので，A-1 測点における試験掘の鉛直な横壁に沿つて，深さ 10 cm ごとに試料を採取し，比帯磁率と β 線強度とを測定し，第 9 図にそれらの結果を示した。



第 9 図 交告山 A-1 測点の試験掘断面から採取した試料の比帯磁率と β 線強度

Magnetic susceptibility and β-ray intensity of the samples collected at a vertical face of the trench close to A-1 point in Kōketsu-yama

比帯磁率は地表附近において 1～2×10⁻⁵emu/g 程度で A-1 測点附近に露出する黒雲母花崗岩と同程度であるが，深さ 1.3～1.7 m において数倍程度の比帯磁率を示すことが注目される。

β 線強度[註2]は平均 8～10 cpm で著しい変化を示さない。β 線強度測度の統計的変動による誤差は，この場合危険率 5 % で ±22% 程度であつて，そのうえ少量の試料について測定を行うので，放射性物質が試料中に不均一に分布するための誤差を伴なう。一方孔内放射能強度の測定では A-1 測点における場合，統計的変動の誤差が危険率 5 % で約 ±7 % である。放射性物質の不均一な分布による誤差も，比較的小さくなると考えられるので，今回の試料の測定方法では孔内の測定より誤差が大きい。深さ 20 cm から深さ 70 cm まで，放射能強度が増加する傾向は大体一致している。しかし，β 線強度測定によれば深さによる著しい放射能強度の変化は認められない。

これらの事実は砂鉱中の鉱物組成や，砂鉱の生成として興味があると思われる。

浜地忠男らが調査した各地区の砂鉱の鉱物組成によると，放射性鉱物の含有率が多いと地区では重鉱物[註3]の含有率も多いという傾向がみられる。したがつて放射性鉱物鉱床として経済的価値のある砂鉱床は，磁気探査が有効でないと断言することはできない。

6. 結 語

岐阜県苗木地方の漂砂鉱床に対して，ロクガホッタ地区に引続き，交告山・西大洞地区において物理探査を施した。

地表放射能強度分布・孔内放射能強度分布を測定したが，黒雲母花崗岩の放射能強度より高い値は測定されなかつた。

また地表鉛直磁力分布を測定したが，20～30 γ の局所的な異常が認められたにすぎなかつた。

鉱床調査の結果によつても，今回調査した砂鉱床は経済的価値があるほどの放射性鉱物の濃集は認められず，磁性鉱物の含有量も他地区に比較して少ない。前回調査したロックガホッタ地区を含めて，放射性鉱物の分布は地質・鉱床学的事実と対応する。したがつて今回採用した調査方法は，放射性鉱物を含む漂砂鉱床の探査に対して，一般に有効であろうと考えられる。

(昭和 30 年 8 月調査)

文 献

1) 浜地忠男・堀内恵彦: 岐阜県苗木地方ウラン鉱床報告 1. 苗木町ロクガホッタ地区，地質調査所月報，Vol. 7, No. 9
2) 浜地忠男・谷正巳: 岐阜県苗木地方ウラン鉱床報告，3. 福岡村交告山・西大洞地区，地質調査所，未発表
3) 木下亀城: 本邦の砂鉱床，九州鉱山学会誌，Vol. 9, No. 2, 3, 4, 1937
4) 佐野浚一: 携帯用放射線測定器について(序報)，地質調査所月報，Vol. 6, No. 1
5) 佐野浚一: 携帯用シンチレーション・カウンターについて(序報)，地質調査所月報，Vol. 6, No. 12, 1955
6) 佐野浚一・畑瀬安彦: 岐阜県苗木地区放射能探査報告，地質調査所月報，Vol. 7, No. 1, 1956

註2) 試料を 100 mesh 前後に粉砕して一定量(約 4.7 cc 表面積 6.25cm²)をとり，マイカ・ウインドウ計数管で測定した。β 線強度 10 cpm は，大体それぞれ 0.0036 U_3O_8，0.0012 ThO_2，4.0 % K_2O に対応する。

註3) 本地区の磁性鉱物は熱磁気的研究の結果，普通の磁鉄鉱ではなく，チタン鉄鉱・赤鉄鉱の中間であると推定される。

概　報

553.495：550.82(521.81)

鳥取県小鴨鉱山試錐調査報告

中村顕三　丹治耕吉

1. 緒　言

県倉吉市小鴨鉱山におけるウラン鉱床調査は，昭夏頃から始められたが，その鉱脈の下部方向に変化が不明のため，浅尺の坑内試錐が計画され，年10月から約1カ月にわたり，計4本の試錐をこ。

こその概要を報告するに際し，調査の実施にあたゃの便宜を供与された倉吉市役所の各位，ならび雇者の石坂清福氏に謝意を表する

2. 位置および交通

鉱山は鳥取県倉吉市菅原地内にあり，山陰線上井菅線に乗換え，倉吉駅で下車する。同駅から南方の所に，菅原部落があり，その間トラック道路ている。同部落から約 0.4 km で小鴨坑口に達

3. 準備作業および使用機械類

駅から菅原部落までは，道路の悪い部分もあつた型三輪車を利用して運搬し，部落から坑口までの の間は人力で運搬した。

山は10数年間休山していたため，坑道の崩壊が 通行が困難であつた。そのため崩壊土砂を搬出量は半トン車で約70車分，約35 t，10数箇所にして補修し，坑内の通路と通気を良好にした

には 10HP のデーゼルエンヂンおよび 7.5kW の を設置し，320 V の発電を行い，試錐機の動力用坑内照明用に使用した。

から坑内試錐地点までは約 70 m あり，その間，ブタイヤーコードで連絡した。

した試錐機はロングイヤー社製のプロスペクター能力は EX 孔で 300 ft である。

数は 400，800，1,600 の3段に切換えができるもに 400 R.P.M. を使用した。送りはスクリュ型で，据付はカラム2本を使用して行つた

ドはほとんど EX サイズのサーフェス型を使用 品切れのつなぎとして一部に XRT サイズのイプネート型も使用した。ポンプは手押式の軽便ポンプを使用した。

4. 試錐作業

小鴨旧坑内にみられる花崗岩のうち，石英を伴なう粘土脈は，すでに鉱床調査によつて強い放射能が認められ，また化学分析によつてもウランの検出が行われている。しかしこの鉱脈の下部方向に対する延びが不明なので，これを知るために坑内の立坑附近から4本の傾斜掘りを行つた。

当鉱山の坑道の高さは約2m しかないので，試錐操作にはきわめて不便であつた。そのため櫓の使用もできず，ロッドの揚降は人力によつて行つた。

第1号孔　掘進方向 S 60° E，傾斜角度 56° SE

8.80 m で鉱脈に遇着し，9.40 m まで約 60 cm の脈幅があつた。鉱脈に到着した際，送水を停止し，dry blocking（無水穿孔）でコアーを採取した。このためコアーの採取率は100％であつた。

また鉱脈は珪化されていて，若干の金・銀・鉛・亜鉛を含み，quartz vein もみられた。それゆえダイヤモンドビット以外ではほとんど掘進不能と思われる

結局 17.50 m まで掘進したが 8.80 m の鉱脈以外には，鉱脈を確認できなかつたので第1号孔を中止した。

第2号孔　掘進方向 S10° W，傾斜角度 65° S

5.78 m の所で約2m の空洞に遇着した。これは旧坑と思われたが，当時採掘した人の話では旧坑でないとのことである。またその当時の資料も全然ない

7.75 m からさらに掘進を続けたが，孔曲りのためか回転が著しく困難となり，ビットの消耗も烈しくなつたので，8.90 m で掘進を中止した。

第3号孔　試錐方向 S70° E，傾斜角度 70° SE

11.65 m で鉱脈に遇着し，12.48 m まで 83 cm の脈幅があつた。コアー採取方法は1号孔と同じく dry blocking で行つた。下盤にはいつてから1mほど掘進して 13.50 m で中止した。

第4号孔　掘進方向 S5° W，傾斜角度 69.5° S

16.60 m の所で鉱脈に到着した 99 cm の脈幅が認められ 17.59 m から下盤となり，18.40 m で掘進を中止した。

5. 結　言

（1） 上記4孔の結果からみて，少なくとも立坑レベルより 20 m 下までは鉱体の延びが確認された。

（2） 今後，その延びをさらに確認するためには，立坑を利用して深部にはいつて試錐を行うか，または坑外よりかなり深い試錐を行う必要がある。

（3） 岩盤が非常に硬いので，ダイヤモンドビ
外ではほとんど不可能であろう。

（4） 鉱脈のコアーサンプリングには，ロッド
回数が増加するけれども，dry blocking 無水穿孔
も適当と思われる。（昭和30年10月～11月調

550.83 : 553.43 521.75

兵庫県生野鉱山の 2,3 の鉱脈における放射能強度調査報告

東郷 文雄　上野 三義

鉱床は金・銀・銅・鉛・亜鉛・錫・タングステン鉱て，おもな鉱石鉱物としては，黄銅鉱・閃亜鉛鉱・鉱・硫砒鉄鉱・黄鉄鉱・斑銅鉱・輝銅鉱・錫石・鉄ガン重石・黄錫鉱・灰重石・輝蒼鉛鉱・赤鉄鉱・自鉛・輝銀鉱・濃紅銀鉱などが知られており，脈石鉱しては，石英・方解石・緑泥石・氷長石・螢石・重その他がある。

者らは，昭和29年10月，本鉱山における鉱脈と山近の岩石の一部について放射能強度の予察調査を行，おもな調査対象は，千珠前脈，金盛脈および盛寿一部であつて，開発延押し坑道総延長の1割にも達いない。調査にはフィリップス・ポケット・パッテ・モニターを用いた。

文中では，本鉱山の地質鉱床の概要を述べた後，周母岩と，前記諸鉱脈における放射能強度を10図面もに記載している。その結果，

，附近を構成する諸岩石，特に石英粗面岩類は，地域のものと比較してやゝ高い値を示す。

）測定範囲内では，鉱脈は母岩に比較して一般に値を示し，特に放射能異常を認めていない。

お，測定値の概要は下記の通りである。

母岩の放射能強度(自然数 28 cpm)

.1 石英粗面岩質凝灰岩および同質角礫凝灰岩：38 cpm

.2 石英粗面岩：41 cpm

.3 変質(絹雲母化)石英粗面岩：65 cpm

.4 安山岩：28 cpm

1.5 玄武岩：32 cpm

1.6 変質(絹雲母化)玄武岩：41 cpm

1.7 砂岩(第三紀層)：43 cpm

1.8 頁岩(第三紀層)：35 cpm

1.9 黒雲母花崗岩(竹田地区)：43 cpm

1.10 アプライト質花崗岩(竹田地区)：39 cpm

1.11 石英閃緑岩：24 cpm

1.12 斑糲岩(寺前地区)：15 cpm

1.13 千枚岩(新井地区)：29 cpm

2. 鉱脈における放射能強度

2.1 千珠前脈（下21番坑5番南坑道内約 130 m 間)

鉱脈：17～33 cpm

両側母岩(石英粗面岩)：19～43 cpm

2.2 盛寿脈（4番坑内約 120 m 間)

鉱脈：8～28 cpm

両側母岩（石英粗面岩質凝灰岩）：22～42 cpm

2.3 金盛脈(5番坑南押坑道の一部)

鉱脈：8～30 cpm

緑泥石化母岩：55 cpm

2.4 金盛脈(21番坑および25番坑道)

鉱脈：8～34 cpm

母岩(石英粗面岩および同質凝灰岩)：23～50 cpm

母岩(安山岩)：12～33 cpm

(昭和29年10月調査)

資　料

548.7 : 549.75 : 553.495

酸化ウランのX線解析

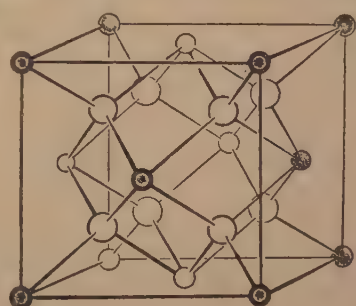
G. A. Sidorenko
小西　善治訳

1.　天然ウラン酸化物の格子の unit cell のダイメションの変化

ウラン酸化物は，天然条件下では3つの形態の異なる変種として出会している。すなわち明確な結晶形態の閃ウラン鉱，潜晶質，コロイド形態のピッチブレンド，ウラナイト，粉状形態媒質の黒色ウランである。時間断面における酸化物の組成の変化は，ウランの放射性崩壊の方向に進行し，放射源鉛を含む天然ウラン酸化物が出現するとともに，酸化によつて4価ウランが6価ウランの状態となる。天然ウラン酸化物の組成は，(U, Th)O_2・$m$$UO_3$・$n$PbO 式で表わされる。ウラン酸化物における UO_3 : UO_2 の相関関係は，その酸化の度合を特色づけ，酸素係数 x で表わされる。酸素係数は，与えられた酸化物試料中のウランの1原子に適合する酸素の原子数を示す。x の値は，試料中の UO_2 と UO_3 との含量の化学分析によつて求められる註1)。天然では，鉱物中のウランはそれぞれの程度で常に酸化されているので，その組成が UO_2 式に対応するような鉱物類に出会しない。

Ellsworth は，明らかに帯状構造—外部層から結晶の深部へ酸化が進行して生じる—をもつ閃ウラン鉱の結晶によつて，酸化に伴なうウラン酸化物の組成と性質との緩変化を観察している。酸化の度合によつて，鉱物の色調，硬度，比重，化学的組成が変わつてくる。すなわち U^{6+} の含量が増大し，U^{4+} が減少し，さらに Th および稀土類元素の含量の相対的増加によつてUの含量が一般的に低下するのが観察される。Ellsworth の見解によれば，UO_3 : UO_2 比は，鉱物の破壊（変化）度に関する正確な表象を与える。

こゝで天然のウラン酸化物が時間の経過に伴なつてどのような結晶化学的変化を蒙るか？ということが問題となる。ウラン酸化物に関する最初の結晶化学的研究は，Goldschmidt, Tomassen が行い，閃ウラン鉱が螢石型の結晶構造をもつていることを示した（第1図）。立方体ウランイオンは，隅と面心との位置を占めるが，各 Octant の中心には，酸素イオンが配位している。立方体の稜長は 5.46 Å である。Goldschmidt は，次のような考え方を述べている。



第1図　2酸化ウラン
●ウラン　○酸　素

“多量の UO_3 を含む天然の閃ウラン鉱は，酸化によつて二酸化ウラン UO_2 と構造的には同一となるようである”

最近では Arnott は，立方体の稜長—閃ウラン鉱およびピッチブレンドの unit cell のダイメション—が不定であることを確認した。この種の現象は，Brooker, Nuffield がカナダ産のピッチブレンドについて指摘している。さらにBrooker および Nuffield は，ピッチブレンド

* Сидоренко, Г. А.:　Рентгенографическое изучение природных, окислов урана Геохимия, № 1, Академия наук СССР, 1958

註1)　UO_2 と UO_3 とを化学的分析法によつて分離決定する際に，原子価の遷移する元素，例えば Fe, Mn, V 等および有機物質が存在すると分離が難しくなる。

の Debye 像の様々な特性についても留意しているが，この種の現象の原因を突きとめていない。

Wasserstein は，放射性源の鉛が様々な含量を示すウラン酸化物の unit cell のダイメションにみられる不定の主要原因を検討している。Wasserstein は，ウランが4原子価状態に置換されて酸化物の結晶構造中に残り，unit cell のダイメションが 0.0035 Å／1億年一に変わるので，a 値によつて鉱物の生成年代が決定されると述べている。しかしこの仮設は問題がある。すなわち一方では，放射性鉛が結晶構造中にはいらないが，単位結晶格子の界面に配位しているという仮設がある。他方では，放射性鉛がすべて実際上結晶格子の内部にはいるという観点から出発して，Pb の U^{4+} の置換効果はトリウム，稀土類および6価ウラン→4価ウランの酸化によつて生成される—の U^{4+} 置換効果をこわす。

このような研究は，成因関係の異なるソ連産，外国産の天然ウラン酸化物について行われたものである。大多数の研究対象は，天然では多結晶質または単結晶質閃ウラン鉱の場合の破砕片の形態で出会するので，X線解析は Debye Scherrer 法で行われている。Debye 像は，次の作動様式により，BSV X 線管（鉄，クローム，鉛）の放出する様々な X線で求められている。すなわち作動様式としては，25，34，45 kV，8，10，16 mA，カメラは 57.6，86.0 または 114.0 mm 径のものを使用した。Debye 像の測定には精度 ±0.01 mm の NzA-2型 Comparator で行われた。反射角の値は，標準像—岩塩 a=5.6285 Å を使用した—と対比して補正した。

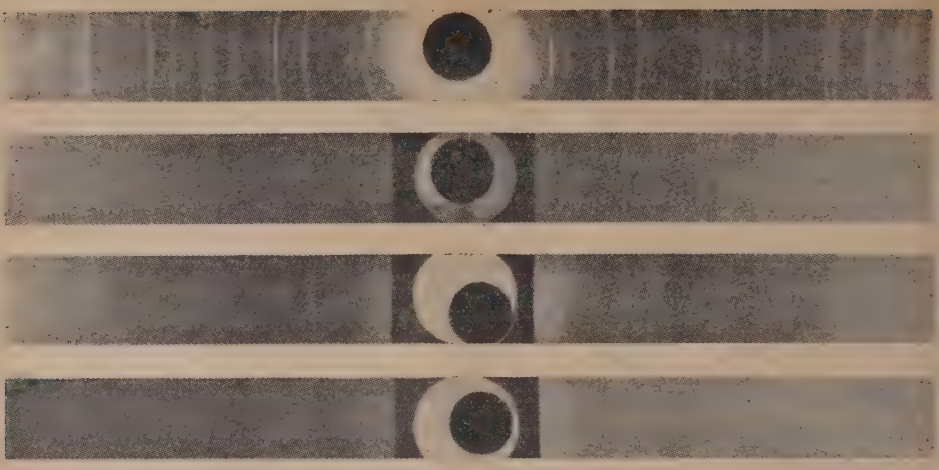
天然ウラン酸化物の予察的考察によると，大多数の酸化物は，螢石型の結晶構造をもち，酸化物の Debye 像にみられる回折性質が異なつている。鉱物類の酸化度によつて Debye 像の X線を対比すると次のような結論が得られる。ピッチブレンドの酸化が進行するに従がつて，Debye 像の回折線は，散乱状になる。Debye 像によると4型が区分される。第1型は，反射角の強い線が特徴となつている。この Debye 像型は閃ウラン鉱である。第2型は小さい角（$\theta=45°$）で鋭い反射を示し，大きな角 θ では広くなるものである。Debye像のこの型は，弱酸化，中位酸化のピッチブレンドである。第3型の Debye 像では，反射角の散乱回折線がみられる。この Debye 像の型には酸化度が進んだピッチブレンドが属する。第4型は，強い background 中に幅の広い Debye 環がみられる。この型には黒色ウランが属する，この型にはしばしば無定形状態（X線に対して）のものに出会する。

酸素係数の大きさ x で天然ウラン酸化物の酸化度を特徴づけるならば，次のようにいえる。Debye 像の第1型は，x が2.5以下か，それに等しい酸化物がある。第2型は x が2.5以上の酸化物に属する。実験によると，明確な Debye 像を求めるのには X線の対陰極に銅製のものを使用するのがよいようである。この条件で求められた Debye 像では，天然ウラン酸化物の酸化度を質的に評価できる。

Debye 像型間には，天然ウラン酸化の間にみられないように，明確な境界かもちろん認められない。その組成中には UO_3：UO_2 比のガンマ線に出会し，x は2から3までの範囲の変化を示す。第2図には，全4型（酸化物型）の Debye 像がかゝげられてある。

人工ウラン酸化物の研究では，$UO_{1.75}$—$UO_{2.50}$ 組成の範囲では，ウラン酸化物の結晶型は螢石型であつて，4価から6価へウランの酸化度が進むにしたがつて，酸化物の unit cell のダイメション状態は，縮少状態となるのが知られている。さらに天然のウラン酸化物のダイメションが不定であることが知られている。したがつて天然酸化物の unit cell のダイメションとその酸化の度合とを対比することは合理的である。この種の対比は本論文で行われた。

まず閃ウラン鉱・ピッチブレンド・黒色ウランの試料についてスペクトル解析と微量化学分析を行つた。その結果は第 1，2，3，4 表にかゝげられてある。試料の mineralgraph 的研究では，黄鉄鉱・方鉛鉱・黄銅鉱およびその他の硫化物が認められている。polish セクション。この種の鉱物類は，できる限り試料から除去し，Debye 像が試料中のウラン酸化物のみをあら



第2図 4グループの天然ウラン酸化物（様々な酸化度）の Debye 像の回折線の特性によつてウラン酸化物の酸化度を知ることができる（Cu 対陰極線）

第1表 閃ウラン鉱のスペクトル解析成績

試料 No.	＞1%	～1%	～0.1%	～0.01%	～0.001%
1	U Pb Si Fe	Na	Al Mg Ca MnP	Ni Co Mo Cu Sb	Bi?
2	U Pb Si Fe	Ca Na	Al Mg P Mn Cu	Ni Co Ag Sb	—
3	U Pb	Ca	Si Al Mg Y Yb Na	Fe Mn Cu Sc	Ag
4	U Pb	—	AlY, Yb	Si Mg Fe	Mn Cu
5	U Pb Si Fe Mg	Ca Na	Al Mn P	Ni V Mo Cu Sb	Ag
6	U Pb	Th	Y Yb	—	—
7	U Pb Fe	Si Mg Ca Mn	Al Zn Sn	Ti Zr	Cu Ag Bi
8	U Pb	—	Si Al Fe Th Y Yb	Mg Ca Mn Cu Bi	Ag
9	U	Ca Cu Pb Na	Si Al Fe Y Yb	Mg Mn Ag	Sn

第2表 閃ウラン鉱の微量分析成績

試料 No.	1	2	3	4	5	6	7	8	9
UO_2	32.23	34.32	39.79	41.78	28.73	42.64	32.04	37.80	29.07
UO_3	18.19	19.69	26.00	28.92	24.91	37.83	31.11	37.46	35.32
ThO_2	—	—	—	—	—		—	1.62	—
PbO	極多量	多 量	17.38	20.28	極多量	19.53	18.64	19.05	多 量

わすようにしておいてから，化学的X線解析を行つた。

天然のウラン酸化物の研究のために，unit cell a の大きさを決定した。第5表には，閃ウラン鉱の酸素係数とその unit cell の大きさの対比がかゝげられてある。酸素係数 x の大きさは化学分析のデータから算出した。

対比結果によると，閃ウラン鉱には，人工試料でみられたと類似の現象が認められる。すなわち4価ウランから6価ウランへ移行する——層酸化状態にある閃ウラン鉱——に従がつて unit cell の大きさは，対称を保持する場合にはその大きさが減少する。螢石型 CaF_2 の結晶構造をもつ人工ウランでは，酸素係数 x の値の Interval が小さく 2.00 から 2.25 であるが，天然ウランでこの種の結晶構造が保存されているものでは，Interval が大きい。本研究では，酸素係数の値が 2.32 から 2.53 の範囲で変わる閃ウラン鉱を観察することができた。この場合 unit cell の大きさは，5.480 Å から 5.455 Å へ規則的に減少した。試料 No. 4, 8 にはこのよう

第3表　ピッチブレンドのスペクトル解析（2～3型）

試料 No.	≥1%	～1%	～0.1%	～0.01%	～0.001%
10	UAl	Ca Si Na Pb Mg Ba	Co P Tl Cu As Zn Ni	Fe Y Yb Bi Sb Ag Mn	—
11	UPb	—	Sl Al Ca	Na Fe	—
12	UPb	Si Al Ca Fe Bi Mn	Mg V W As Na	Mo Cu Ag Sb Zn Be	Ge?
13	UPb	Si	Mn Co Cd W Sb Tl Zn	As V Cs Cu Y Yb Ag	Sn Be Ga Ge
14	UCa	Si Al Mg	Fe Ti	Mn V Zr Pb Na	Cu
15	UPb	—	Si Ca	Al Fe	—
16	U Ca Fe Pb As	Al Ag Sb Na	Si Mg Mn	V Mo W Cu Y	Ni Bi
17	UPb	Ca Sb As Na	Al Mn Mo	Si Mg Fe Zn	Cu Ge
18	U	Al Si Mg Pb As	Fe Cu Sb Bi	Ca Mn Ti Zr Ag Y Yb	Ni
19	U	Pb Si	Al Ca V Bi As	Mg Fe Mn Y	Cu Ag Be
20	U	Ca Zn Si	Al Be Mn	Mg	Ge Cu Pb?
21	U	Si	Al Ca As	Pb Be Y Yb	Fe Mn
22	UCa	Si Zn Be	Al Mn Sb	Mg Fe Cu	Pb?
23	U	Ca	Si Al As Sc	Mg Fe Pb Mn Y Yb	Ni Ti Cu

第4表ピッチブレンドの微量化学分析

2　群

試料 No.	10	11*	12	13	14	15	16	17	18
UO_2	35.19	22.57	59.16	55.93	36.20	38.67	42.19	43.46	32.10
UO_3	17.00	7.79	27.59	29.00	27.56	28.03	33.15	47.63	44.30
PbO	0.63	6.86	1.00	10.19	少量	19.68	2.18	極多量	なし

* ウラン試料の含量の低いのは混合物の分離不充分であることを示している

3　群

試料 No.	19	20	21	22	23
UO_2	34.91	32.03	37.43	28.78	33.00
UO_3	38.58	41.87	42.27	50.29	57.52
PbO	多量	なし	0.31	なし	少量

第　5　表

試料 No.	1	2	3	4	5	6	7	8	9
x	2.32	2.36	2.38	2.40	2.45	2.46	2.48	2.48	2.53
a 値	5.480	5.479	5.472	5.460	5.470	5.459	5.458	5.455	5.456

な相関関係の若干のずれが認められた。しかしスペクトル分析によると，この種試料は多量のトリウムと稀土類とを含んでいる。トリウムは，周知のように，原子4価状態のウランを同型置換する性質をもつている。

天然化合物には，UO_2 から ThO_2 にわたる完同型列の存在することが認められている。Robinson, Sabina の研究は，閃ウラン鉱からナトリウム石にわたる同型列の様々な代表鉱物が天然条件下で存在することを確認し，ウランとナトリウムとの置換が天然にみられることを裏付けている。トリウムのイオン半径は，4原子価状態のウランのイオン半径よりも大きいか

第 6 表

2 群

試料 No.	10	11	12	13	14	15	16	17	18
x	2.16	2.25	2.31	2.33	2.37	2.43	2.43	2.50	2.56
a 値	5.46	5.45	5.43	5.43	5.42	5.42	5.41	5.41	5.41

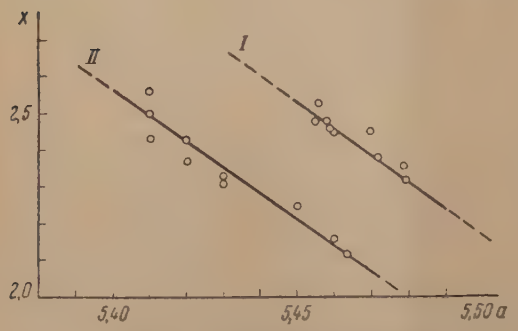
3 群

試料 No.	19	20	21	22	23
x	2.51	2.52	2.52	2.62	2.62
a 値	5.39	5.38	5.37	5.37	5.37

ら，この種の置換は，閃ウランの unit cell の大きさの増大を招く．UO_2 と CeO_2 の同型性は，稀土類元素が4価ウランを同型置換して閃ウラン鉱の結晶構造にはいることが考えられる基礎となる．このような現象は，閃ウラン鉱が酸化度によつて unit cell の大きさの相関関係—酸素係数—にずれが認められる原因となつている。

第6表には，2, 3 群のピッチブレンドの unit cell の大きさと酸素係数とがかゝげられてある。この表からみられるように，ピッチブレンドにも，閃ウランにみられる unit cell の大きさと酸化度 x との相関関係が出現している。ピッチブレンドには，トリウムおよび稀土類元素が含まれていないようである。したがつて相関関係のずれはほとんど認められない。むしろ"ずれ"は化学分析の不正確によるものである．しかし混合物の影響を蒙らない一層適切な他の酸化度評価法が存在しないので，このような不正確なデータが利用されている。ピッチブレンドの unit cell の大きさ，x が 2.16～2.62 の範囲の変化する場合には 5.46 から 5.37 Å の変動を示す。

ピッチブレンドの unit cell の大きさは，一層酸化度の低いものから高いものへと移行する際に減少する。しかし閃ウラン鉱で認められる x の値が大きくなる側へ単純に比の増大が起こらない。このような現象は，$x=f(a)$ の相関関係を一座標系で表わすと明らかにみられる(第3図参照)。第3図にウランの unit cell の大きさの変化と，その酸化度の変化との間にみられる，2つの平行的な相関関係が示されている。この種の現象の原因は，研究対象の形態的変種の成因的特性によるものであろう。



第3図 $x=f(a)$ の相関関係の特性を示す。
(*I*) 閃ウラン鉱 (*II*) ピッチブレンド

相関関係を明らかにするのに，閃ウラン鉱・トリウムの含量および稀土類元素の低いもの，ピッチブレンドの unit cell の稜長によつて酸化度を決定することが考えられる．

酸化度を決定するためには，試料として 5～10 mg が必要である．ピッチブレンドと閃ウラン鉱との unit cell の大きさの決定精度は，前者が大きな反射角の散乱線を示すので異なつている．実験によると，0.001 Å に等しい a の決定精度．閃ウラン鉱の場合には，x の値は，±0.02 の精度で決定される．a±0.005～0.01 Å の決定精度の場合(ピッチブレンド)には x の決定精度は，絶対値 ±0.05 に等しく，化学分析による UO_2 と UO_3 の分割決定の精度 ±2.0 % 絶対値に等価である．鉱物学者にとつては，このような決定精度は，とくに研究資料

が少量である場合には充分満足される。

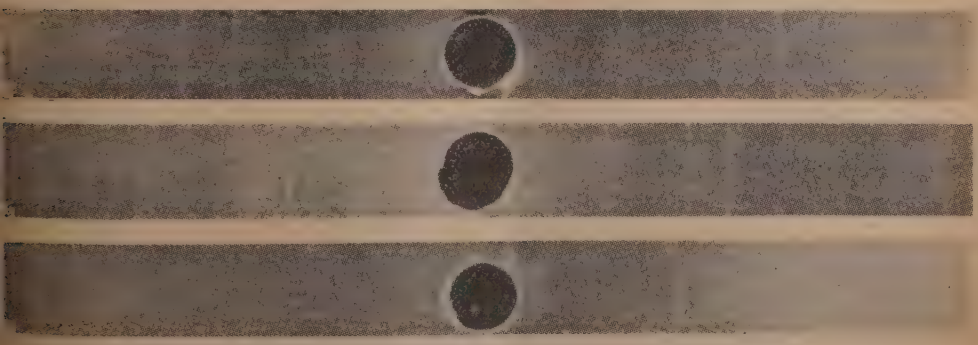
天然ウラン酸化物の酸化度のX的解析的特性は，螢石型の結晶構造—人工二酸化ウランの結晶構造に類似している—を有する酸化物の再結晶部分の特性である。

酸化度によつて天然ウラン酸化物の unit cell の大きさが小さくなる原因としては，イオン半径 0.89Å の4価ウランと6価ウラン—イオン半径に等しいと推定されている—との同型置換を考えるのが合理的である。この場合ウランの原子価が増加すると，酸素原子が結晶構造にはいつて補償される。すなわち酸素原子は，ウラン原子のパッキングの八面体型のすきま（単位立方体の稜の中央に位置する）をふさぐか，あるいは cell の中心を占める。しかし結晶化学的にみれば，後者の可能性は薄い。この場合には，酸素に隣接する原子がそれと同一名の原子となるからである。cell の稜に原子（補足）が配位しているのは，CaF_2 型の結晶構造（例えば CaF_2+YF_3）に特徴的である。酸素原子がこのように配位するために，天然ウラン酸化物に観察される立方体相の正方晶系相への緩移行が明らかとなる。すなわちこのような現象は，酸素原子（補足）が立方体型の水平方向または垂直方向の稜にのみ配位するから起るものである。酸素が結晶構造へ附加されても，ウラン原子は押し動かされない。これは，八面体型のすきまが充分大きい（立方体の稜長は 5.46 Å，2 イオン半径の総和は U^{4+}1.78 である）からである。したがつて unit cell の大きさに及ぼす一定の影響として，U^{4+}，U^{6+} の同型置換—Vergard の法則が支配することが考えられる—が出現する。天然ウランにおけるウランの緩慢な酸化は，人工酸化物に起るような unit cell の対称変化を誘導しない。たゞし U^{6+} の含量が多量の場合にのみ，結晶構造の乱れが現われ，その乱れは Debye 像の X線の性質には反映するようになる。

2. ピッチブレンドおよび黒色ウランの Debye 像にみられる回折線の散乱性について

ピッチブレンドおよび黒色ウランが著しく酸化作用を蒙つていると，散乱性回折線が得られることを述べておいた。散乱性は，酸素係数 x の大きな試料へ移行すると増大する。Debye の線は，研究対象の物質が高分散性物質，すなわち結晶の大きさが 0.1 μ 以下のものでは分散が起こる。結晶構造が二次電圧（Voltage）飽和をもち，そのために平行面かのパック（Pack）間の距離かあるいは個々の面間の距離が変わると，面間距離 $d+\Delta d$ の近似値をもつ面から $\Delta\theta$ 角のある範囲内で反射が起る。このような Debye 像の線の拡大を解釈する場合に，二次電圧の発生による拡大現象が，$\mathrm{tg}\,\theta$ 角に比例する反射角の増大によつて成長するものと考えると容易に理解される。しかしサンプルの高分散度によつて起る線の拡大は $\lambda \sec\theta$ に比例し，X線解析に使用される波長に左右される。

著しく酸化作用を蒙つているピッチブレンドおよび黒色ウランの回折線が，拡散現象を明らかにする目的で，波長の異なるXの Debye 像について求められている。クロム・鉄・銅（λ



第 4 図　波長の異なる Cr, Fe, Cu によつて求められたピッチブレンドの Debye 像

2,287, 1,934, 1,539 Å に対応する作動様式は次のようである。電圧 25, 30, 40 kV, 電流 8, 10, 16 mA, カメラの径 57.3, 86.0 mm, 試料の径 0.3～0.4 mm である。散乱拡大線は Jones[2]のグラフによつて求めた。線の散乱は使用X線の波長によつて異なつてくることがこの実験で確かめられた (第4図)。さらに線の拡大と反射角 $\beta=f(\theta)$ との相関関係の特性は, ピッチブレンドおよび黒色ウランの Debye 像にみられる回折線の散乱現象の主要な原因としては, この種の鉱物類の分散度の高いこと, 酸化度の増加に伴なつて成長すること が裏付けられた。この結果に基づき, 次式を使用してピッチブレンドおよび粉状ウランの結晶の大きさが決定される。

$$\beta=\frac{C\cdot\lambda}{\epsilon\cdot\cos\theta}$$

β: Debye 像の線の散乱拡大を示す。
λ: 使用X線の波長
ϵ: 立方体型結晶の大きさ (稜長)
θ: 反射角
C: 1.0～0.9 に等しくとられた定数

著しく酸化されたピッチブレンドと黒色ウランの結晶の大きさは, $x>2.5$ の場合には, 150～300 Å の範囲内にあつて, 酸化物の酸素係数の増加—同時に unit cell のダイメションの低下を伴なう—につれて減少する。ウラン酸化物の分散性に関する一層詳しい研究はすでに報告した。

3. 焼結による天然ウラン酸化物の相転移の特性について

人工・天然ウラン酸化物の研究によつて, 人工酸化物が, x 値が 1.75～2.24 の範囲内では CaF_2 型の結晶構造を維持することが知られている。しかし空気中で焼結酸化すると, $x=2.24$, 温度 175 C で立方体相に再結晶する。300°C では, 立方晶系の U_3O_8 酸化物の生成が始まる。天然酸化物は天然の条件下では, 2から3に事実上わたる x 値の著しく広い範囲で CaF_2 型の結晶構造を保持している。すなわち天然条件下では, 酸化は緩慢に進行し, 酸化物の unit cell のダイメションの変化が起るが, 対称変化を伴なわない。Goldschmidt は, 閃ウランの結晶構造の研究を最初に行い, "酸素との部分または完全接触状態で焼結を行うと, 閃ウランは U_3O_8 に移行するが, 純粋の UO_2 は変化を蒙らないで残留する" ことを指摘した。Conybeare, Furguson は, この仮説を利用して, ピッチブレンドの焼結産物を研究し, ピッチブレンドの分類案を提出している。この分類は, 非焼結試料と焼結試料との Debye 像 (正確にいえば相組成) の対比によつている。Conybeare, Furguson の見解によると, 与えられたピッチブレンドの酸化度を配位的に評価することができる。

1. 晶質ピッチブレンド, 非酸化焼結前および後においても, strong な UO_2 像を示す。

2a. metamict ピッチブレンド, 非酸化, UO_2 像は, 焼結前には weak であるが, 後には strong である。

2b. metamict ピッチブレンド, 部分酸化, UO_2 像は, 焼結前には, weak, 焼結後には U_3O_8 と UO_2 とは mild strong になる。

2c. 著しく酸化されている metamict ピッチブレンド, UO_2 像は, 焼結前には weak, 焼結後には, U_3O_8 は mild strong, UO_2 は weak となる。

3. 著しく酸化されている晶質ピッチブレンド, 焼結前には, UO_2 像は strong, 焼結後には U_3O_8 は strong, UO_2 は不変である

分類を行つた著者は, 焼結に対するピッチブレンドの様々な挙動の原因として, 鉱物類の酸素含量の異なる点をあげている。すなわち "加熱" によつてウランと酸素との化学反応が行われるが, 空気中の酸素は, 中和状態にあることが考えられる。他の研究者によると, ピッチブ

2) Jones, F. W.: Proc. Roy. Soc., Vol. 166, No. 16, 1938

レンドに他種の鉱物類が(機械的)混合しているのが原因であると推測している。

しかし焼結に対する天然ウラン酸化物の様々な挙動の原因を述べるに先き立つて，焼結によつて天然ウラン酸化物が蒙る相転移の研究を詳しく行うことが必要である．研究対象には，閃ウラン，ピッチブレンドおよび黒色粉状ウラングループについて行われた。研究の主体としては，上述のスペクトル解析および化学分析(主要成分)を行つた試料が使用された

人工酸化物試料は，陶器製のるつぼ(開放式)のマッフルのなかに入れて行つた。測定温度は，水銀温度調節器(マフルに入れてある)によつて一定に保たれた。そのほかにマッフルの温度は，測定精度±5°の白金製熱電対様式のミリボルトメータによつて制御した．3～5 ミリグラムの試料は，メノウ乳バチで粉砕し，一定の温度に保つて30分間焼結した。焼結後，Debye 像を撮影するためにふたゝび粉砕し，細粉は cellulose nitrate varnish によつて径0.25～0.30 mm ガラス繊維に膠付けした。

各鉱物の分割試料は，50度間隔をおいて(300，350，400，450等 300度から1000度の温度範囲で焼結を行つた。焼結試料は，(銅の対陰極線，電圧 45 kV，電流 16 mA. カメラの径 57.3 mm で Debye 像が求められた。Debye 像の解析には標準 Debye 像の対比によつた．結晶構造の新しい相が認められる場合には，試料を大きな径のカメラ(86.0～114 mm)で撮影した．面間隔距離の補正値を求めるために，この相とともに内標準試料(NaCl)の写真をとつた。焼結産物の解析にあたつては，粉末X線解析法は，結晶の大きさ 0.01 μ，試料の含量5～10 %(体積)の場合にだけ再結晶相が明らかにできる点を考慮に入れた。そのために時間的におくれて起る相転移が撮影できるようになつた。天然酸化物の分布曲線は，Syromiatnikov のパイログラフで求められた。

研　究　成　果

閃ウラン

第7表には閃ウランの焼結によつて起る相転移の特性があげられている。

第　　7　　表

x \ t°	450	500	550	600	650	700	750	800	850	900	950	1000 C
	相の特性　閃ウランの焼結産物											
2.32	K	K	Кд	Y	Y	Y	Y	Y	Y	Y	Y	Y
2.36	K	K	Кд	Y	Y	Y	Y	Y	Y	Y	Y	Y
2.38	K	K	Кд	Y	Y	Y	Y	Y	Y	Y	Y	Y
2.40	K	K	Кд	КГ	КГ	КГ	Г	Г	Г	Г	Г	Г
2.46	K	X	X	X	X	X	X	決定できない				
2.48	K	K	Кд	Кд	Кд	КдГ	КдГ	КдГ	ГКд	ГКд	ГКд	ГХ?
2.48	K	K	K	Y	Y	Y	Y	Y	Y	Y	Y	Y
2.48	K	K	X	X	X	X	X	X	X	Y	Y	Y
2.53	K	K	Кд	X	X	X	X	Y	Y	Y	Y	Y

K：CaF_2 型構造の立方体型相　　Kф：同一相であるが，散乱回折線をもつもの
Y：Y相　　X：Brooker, Nuffield　　Г：六方晶系相 U_3O_8

第7表によると，

1) 天然状態の閃ウランに固有の CaF_2 型結晶構造は 500～550° まで保たれる。温度の上昇に伴なつて回折像は一般に weak となり，Debye 写真図の background は strong となるのが観察される。このような現象は，結晶構造の部分破壊が起つていることを示すものであるが，潜晶状態への完全転移は認められない。

2) 550～600° の温度では，Y相と名付けられる新しい相が形成される。大部分の閃ウラン鉱では，焼結温度 1000° まで，この相が保たれる(相の記載は下記参照)。

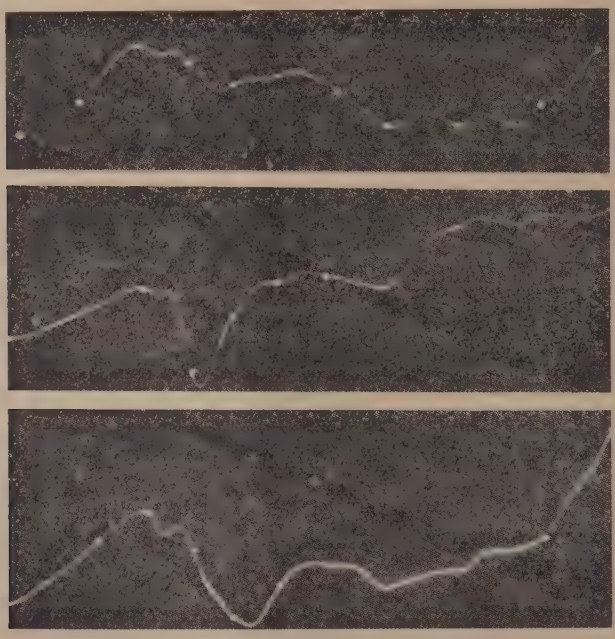
3) 著しく酸化された閃ウラン鉱は，X相を経てY相に転移する。この種の現象は，Brooker と Nuffield がカナダ産のピッチブレンドの焼結産物について観察している。この場合Y相の生成温度は 800° である。

4) たゞ2例について，U_3O_8 の六方晶形相の生成されるのが観察された。この相は焼結温度 600～700 で起り，生成当初には，立方体相あるいはY相と共存する。800～1,000° では，独立に存在する。Y相には，出会しない。

閃ウラン鉱にみられる1相から他相への転移温度および相転移の特性は，全体として，その酸化度にも，組成にも，unit cell の大きさにも関連性をもつていない。

大気中で焼結する場合には，立方体相の unit cell のダイメションの縮小が観察されるのは面白い現象である。焼結の際の大気中の水素には，このような縮小が認められない。したがつて焼結の際に天然ウラン酸化物の相転移が過剰の酸素—酸化物の構造に含まれている—と U^{4+} との相互作用によつて生じるという Conybeare, Furguson の仮設には疑問がある。

閃ウラン鉱の相転移に関するX線解析と平行に Syromiatnikov のパイログラフで3試料の熱分析曲線の解析を行つた。熱曲線は第5図に示されてある。



第5図 閃ウラン鉱の熱分析曲線
(Syromiatnikov のパイログラフ)

5 全熱分析曲線では，325～350° の間で1つの発熱効果が観察される。熱曲線とX解析データを対比すると，次のような結論が得られる。(1) なだらかな吸熱効果は，4価ウランの6価ウランへの酸化によつて生じる。閃ウラン鉱の結晶構造の部分破壊と関連性をもつている。X線解析では background が拡がり，回折線の散乱度が強まつてくる。(2) 発熱効果のピーク(325～350°)は，YまたはXの新結晶相の生成の開始期にあたつている。X線解析では，新相の生成は“おくれ”て表われるから，この種現象は 500～550°C で指摘されている。(3) 350° 以上の温度では曲線の“ゆれ”は，結晶構造の転移効果が“重畳る”ものと解釈できる。これはYと G 相は，焼結過程で一定の状態を保たないことをみれば明らかである (以下参照)。

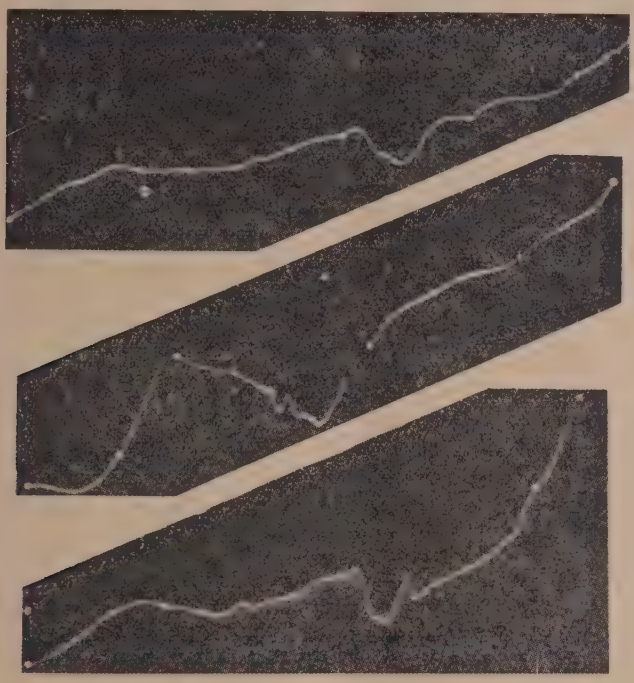
ピッチブレンド

ピッチブレンドは，焼結すると閃ウラン鉱よりも一層単調な，かつ若干異なる変態を示す。

CaF_2 型構造をもつ立方体相は，弱い中位の酸化度のピッチブレンドでは，500～700 まで，強度に酸化されているピッチブレンドでは，400～500° まで保存される。この温度に達すると，立方体相と生成後の初期には共存する六方格子相 U_3O_8 とか，突如として顕在化する。六方格子相の顕在化温度は，原ピッチブレンドの x 酸素係数の大きさに逆比例する。x の値が大きければ，U_3O_8 の顕在化温度は低い。六方晶系相は，焼結開始期には1個の "大きな" (Milne の表現する) unit cell で特徴づけられるが，700° では全ピッチブレッドには，小 unit cell をもつ相の出現が観察される。両相はさらに共存する。

ピッチブレンドの焼結の場合には，Y相はきわめてまれに観察される。

ピッチブレンドの熱曲線は相当単調であつて，400～700°C の温度範囲に1つの大きな吸熱ピークが認められる 第6図。一層高温に達すると，曲線の "ゆれ" は小さくなる。ピーク



第6図　ピッチブレンドの熱曲線

は U_3O_8 の晶出期にあたり，"ゆれ" は，相の異なる六方格子系相が出現していることを表わしている。100～300 でみられる小さな "発熱変化の山" は，人工酸化で収着水のそう失と結晶構造の部分破壊とが起つていることを明らかに示している。

黒色(粉状)ウラン

この種試料は，比重の軽い単一試料について一般的な結論をくだすことはできない。しかし，少なくとも，焼結によつて黒色ウランの挙動に特異な現象が現われるのが認められる。すなわち CaF_2 型の結晶構造に対応する Debye 線は緩徐に拡大し，弱化し，最後には 400～500° で消滅する。Debye 像の background は，この場合には，strong となり，酸化物は潜晶質状態へ移行する。潜晶質酸化物は破壊されて Y相または(まれには) 六方晶系相が500～700° で生成される。晶出温度は，原試料の酸化度によつて異なつてくる。ピッチブレンドの焼結の際には，晶質 UO_3 の生成は認められていない。

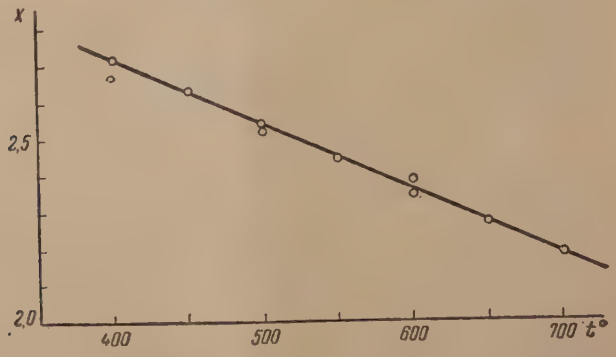
六方晶系相の天然ウラン変態温度とその酸化度との相関関係について

多くの研究者は，天然ウラン酸化物が焼結によつて U_3O_8 へ転移する温度が一定していない

第 8 表

試料 No.	10	11	12	13	14	15, 16	19	20, 21	24	22	25	26
x	2.16	2.25	2.31	2.33	2.37	2.43	2.51	2.52	2.53	2.62	2.66	2.71
t°	700	650	600	600	600	550	500	500	500	450	400	400

ことをたびたび指摘している。この種の現象の原因としては，酸化物への機械的混合が考えられている。しかし酸化物の変態温度をスペクトル解析，化学的分析，鉱物の共生関係と対比してみると，この種の見解に賛成できない。ピッチブレンドおよび黒色ウランを含む鉱物グループでは，変態温度と原試料の酸化度の間に一定の相関関係が明らかに認められる。第8表。この表には，ピッチブレンドおよび黒色ウラン系の U_3O_8 の転移温度と原試料の酸素係数値との対比がかかげられてある。酸化物の U_3O_8 への転移温度の相対的な評価でも，U_3O_8 への天然ウラン酸化物の変態転移温度の不定の原因としては，天然状態における酸化度の差によることが立証される(絶対的評価と名付けることはできない。これは，X線解析では新相が時間的にずれて出現し，各試料の焼結温度範囲がそのために比較的大きくなるからである)。4原子価ウランが6原子価状態にまで酸化すると，その結晶構造は一層脆弱な状態となり，変態が容易となる。天然酸化物が U^{6+} を多量に含んでいると，U_3O_8 への転移温度は低くなり，温度の範囲は300°である。すなわちこの温度は，人工 U_3O_8 の晶出温度にあたつている。この種の臨界温度は潜晶質の天然ウラン酸化物の特徴になつている。しかし弱酸化ピッチブレンドに転移が起るのには，700°まで焼結することが必要とされる。第7図には，U_3O_8 へのピッチブレンドおよび黒色ウランの転移温度とその酸化度との相関関係がグラフで示されてある。



第 7 図 六方晶系相の U_3O_8 への(ピッチブレンドおよび黒色ウラン)転移温度と酸化度との相関関係にみられる特性

六方晶系相

X線解析人工 U_3O_8 の単結晶に関する Milne の研究によれば，この種酸化物は，原子の配例が六方晶系的対称をなし，多くの場合，1構造型の2相からなつている。unit cell は a ダイメションのみが異なり(3.86 と 3.93 Å)，単結晶では，原子が平行に配向している。

天然ウラン酸化物の焼結物のX線解析によると，焼結初期に大きな unit cell をもつ，“1 unit 状”相が形成され，さらに焼結が進行すると，“2 unit 状” U_3O_8 が常に生成される。立方体相の一次六方晶系相への転移は，Leaping 的に起り，一次六方晶系相の二次相への転移は緩慢に行われる。すなわち一次相の反射像は，分裂して発散状態となり，最小 cell a に変化する。900° の温度では，個々の試料は unit cell a のダイメションが異なる数相の酸化物が得られる。したがつて複雑な回折像が生じ，*hkl, hoo, oko* の反射像は(1構造型の数相に対応する)著しい反射を示すグループに置換される。各相のパラメータの評価は，反射像が

第9表　天然ウラン酸物の焼結産物六方格子系相の原子間距離の価

one cell		two cell		multi cell		one cell		two cell		multi cell	
—	—	—	—	6.87	2	—	—	1.324	5	1.331	1
—	—	—	—	5.86	3	—	—	1.312	2	1.319	1
—	—	5.16	2	5.07	1	—	—	1.300	2	—	—
4.61	2	4.58	4	4.62	5	—	—	1.282	7	1.285	8
4.14	7	4.14	10	4.11	5	1.266	2	1.264	1	—	—
3.77	2	3.79	4	3.76	2	—	—	1.252	5	1.255	2
—	—	3.69	1	3.50	3	—	—	1.224	5	1.231	2
3.42	10	3.44	10	3.41	10	—	—	1.209	4	1.217	1
—	—	3.33	7	3.32	6	—	—	1.197	1	1.196	1
—	—	—	—	3.23	10	—	—	1.147	3	1.147	3
2.914	1	2.926	4	3.024	2	—	—	1.139	3	—	—
—	—	2.878	1	—	—	—	—	1.126	5個	—	—
—	—	—	—	2.734	5	—	—	—	—	1.116	1
—	—	—	—	2.703	5	—	—	1.108	6	—	—
2.632	9	2.645	10	2.652	8	—	—	1.089	4	—	—
—	—	2.591	7	2.608	2	—	—	1.078	6	—	—
—	—	—	—	2.516	5	—	—	1.062	1	—	—
—	—	2.293	2	—	—	—	—	1.036	3	—	—
—	—	2.214	1	2.208	4個	—	—	1.003	4	1.016	1
—	—	2.148	2	—	—	—	—	—	—	1.002	1
2.070	3	2.073	6	2.086	4	—	—	0.9928	6個	0.9907	1
—	—	2.004	5	2.017	8	—	—	0.9764	2	—	2
1.945	6	1.941	7	1.986	8	—	—	—	—	0.9696	1
—	—	—	—	1.960	8	—	—	0.9604	1	—	—
—	—	1.903	2	1.996	6	—	—	0.9520	3	0.9567	1
—	—	1.868	1	1.843	6	—	—	0.9358	2	0.9445	1
—	—	1.835	1	—	—	—	—	0.9221	3	0.9334	1
—	—	1.806	5	1.815	7	—	—	0.9170	3	—	—
—	—	1.776	8	1.785	7	—	—	0.9051	3	—	—
1.756	8	1.758	9	1.769	7	—	—	0.8915	3	—	—
—	—	1.745	5	1.724	5	—	—	0.8838	4	—	—
—	—	—	—	1.691	6	—	—	0.8753	2	0.8678	2個
—	—	1.664	4	1.666	1	—	—	0.8616	4	—	—
—	—	1.588	6	1.605	8	—	—	0.8473	4	0.8564	2個
1.579	2	1.570	1	1.551	1	—	—	0.8180	4	—	—
—	—	1.544	5	1.524	1	—	—	0.8107	5	—	—
—	—	—	—	1.485	2	—	—	—	—	—	—
—	—	1.441	6	1.452	5	—	—	—	—	—	—
1.409	3	1.418	8	1.422	6	—	—	—	—	—	—
—	—	1.382	4	1.407	3	—	—	—	—	—	—

第8図　Multi unit 方晶系相の Debye 像，天然ウラン酸化物の焼結産物 (CuKαβ，カメラの径 86.0 mm)

複雑なので難しくなる。第9表には，相の原子間距離の値―天然ウラン酸化物の焼結産物―が示されてある。六方晶系の 1.2 多 unit。第8図には，multi unit の六方晶系酸化物の Debye 像が示されてある。六方晶系相の変化の特性は，原産物が閃ウラン鉱の場合にもまたピッチブレンドの場合にも同一である。

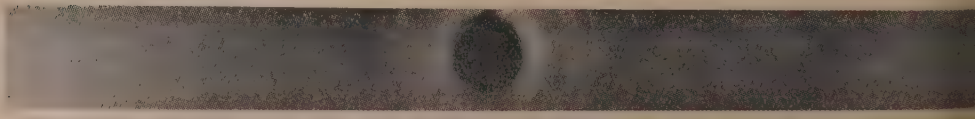
Y　相

閃ウラン鉱・強酸化ピッチブレンドおよび黒色ウランを焼結する場合には，Y相と名付けられる新相がしばしば形成される。このY相は，焼結最終産物であつて，あたかも六方格子相を置換しているような状態を示す。立方格子相から六方格子相への転移は緩慢に起る，すなわち立方格子相の(311)の反射強度が弱くなると同時に反射像が拡まり，(220)の反射強度が強まつてくる。一般には大きな角 θ を示す反射像の散乱度の増大が観察される。Y相の発生温度を

第 10 表 天然酸化ウラン焼結によつて求められた X-Ray 表

one cell		two cell		multi cell		one cell		two cell		multi cell	
—	—	6.02	5	5.86	9	—	—	—	—	1.376	4
—	—	—	—	3.74	3	—	—	1.355	2	1.349	5
—	—	3.56	5	3.56	4	—	—	—	—	1.332	3
3.34	10	3.40	7	3.38	9	—	—	—	—	1.295	4
3.16	6	3.22	10	3.22	10	1.268	6	1.278	5	1.280	5
2.91	3	3.03	6	2.932	7	—	—	—	—	1.252	2
—	—	2.723	8	2.705	8	1.227	3	1.236	5	1.239	4
2.64	7	—	—	—	—	—	—	1.133	3	1.139	1
—	—	2.524	6	2.540	5	1.105	3	1.114	3	1.116	7
—	—	—	—	2.236	2	—	—	—	—	1.097	4
2.19	5	2.198	5	2.201	4	—	—	1.062	2	1.060	3
—	—	—	—	2.149	1	—	—	1.047	2	1.041	6
—	—	2.078	1	2.095	1	—	—	1.010	1	1.024	2
—	—	—	—	2.024	3	—	—	—	—	0.9896	5
1.96	8	1.982	9	1.983	9	0.9781	3	0.9828	1	0.9882	3
—	—	—	—	1.943	6	—	—	—	—	0.9702	3
—	—	1.882	6	1.883	6	—	—	0.9511	1	—	—
1.861	4	1.843	4	1.846	7	—	—	—	—	0.9439	3
1.766	5	1.773	1	—	—	0.9384	2	0.9386	2	—	—
1.693	4	1.692	7	1.707	3	—	—	—	—	0.9262	2
—	—	—	—	1.685	6	—	—	0.9236	1	—	—
—	—	1.651	6	1.649	7	—	—	—	—	0.9199	2
—	—	—	—	1.620	2	—	—	0.8993	1	0.8990	5
—	—	1.601	7	1.599	3	—	—	0.8873	1	0.8899	4
—	—	—	—	1.563	5	—	—	0.8710	2	0.8712	6
1.547	2	—	—	1.542	1	—	—	—	—	0.8535	4
—	—	1.480	6	—	—	—	—	0.8481	1	0.8483	4
—	—	1.448	6	1.457	3	—	—	0.8320	3	—	—
—	—	—	—	1.419	2	—	—	0.8106	1	—	—
1.408	3	1.411	2	—	—	—	—	—	—	0.7820	2
—	—	—	—	1.387	4	—	—	—	—	—	—

確認することは，この相の小さい角 θ の強反射像と最初生成時における新相の立方格子相の反射像とが重なつているので可能性がないように思われる。しかし温度の上昇に伴なつてY相の反射指標像は明確となり，次いで分裂し，複雑な反射像系列を形成する。このような複雑な系列は，六方格子相と類似している点からみて，結晶構造が若干類似している相の回折像の重なり合いによるものと考えられる。焼結の様々な階梯で，相の量が異なるので，その結果として回折像が複雑な状態を帯びてくる。すなわち初期には 1 unit cell，次で 2 unit cell，最後に multi unit cell が生成される。Y相は，鉱物の強度酸化変種に最も特徴的に認められる。この場合には，鉱物には，多量の U^{6+} を含み，Y相へ緩転移する。U^{4+} の U^{6+} への附加酸化—Y相形成を誘導する—によつて生じる U^{6+} の含量がY相の生成に不充分であるならば，附加酸化によつて六方格子相が生じる。この関係の例外は閃ウラン鉱である。強度の酸化作用を蒙つていないならば，閃ウラン鉱は，焼結によつてY相へ転移する。これは閃ウラン鉱の結晶構造が酸化に対して抵抗度が高いことと関連性があるようである。閃ウラン鉱の焼結産物のY相とピッチブレンドおよび黒色ウランの焼結産物としてのY相は同一である。Y相は，鮮明なオレンジ色を示し，原産物（ピッチブレンドまたは黒色ウランであれば）の酸化度の高いことを立証している。第10表では，酸化の種々の階梯におけるY相の面間隔距離の値があげられている。第9図には，多 unit のY相の Debye 像が示されてある。



第 9 図 Y multi cell 相の Debye 像，天然ウラン酸化物の焼結産物(CuKαβ，カメラの径 57.3 mm)

X 相

X相は，Brooker および Nuffield がカナダ産のピッチブレンドの焼結によつて初めて観察した。この研究ではX相は，酸素係数 2.45～2.53 に等しい閃ウラン鉱の焼結産物によつてのみ観察された。X相は，500～600° で生成され，一層酸化度の進んだ相（六方格子相またはY相）の生成に先行する。X相は正方晶系である。Kerr 曲線によつて Debye 像の同定後に，unit cell のダイメションを決定した。a=5.31±0.01, c=5.52±0.01 Å, c/a=1.04，本相は，人工の正方晶相と区別される。立方体相からX相への転移は緩慢に行われる。Debye 像では，初めに立方体相の反射像が拡がり，次で分裂し分裂がすゝむとともに，X正方晶系相の反射像系が生成される。天然ウラン酸化物を焼結する場合には，人工酸化物と異なり，1正方晶系相が観察されている。Debye 像は，第10図にかゝげられてある。第11表には，Brooker, Nuffield との比較データが示されてある。

第 10 図　X 相の Debye 像，閃ウラン鉱の焼結産物(CuK$\alpha\beta$, カメラの径 86.0 mm)

第 11 表　天然酸化ウラン焼結によつて求められた Tetrogonal 相の X-ray 表

閃ウラン鉱焼結物			Brooker の試料		閃ウラン鉱焼結物			Brooker の試料	
—	—	—	5.95	6	040 β	—	—	1.528	1
111 β	3.443	4	3.36	4	132, 123	1.472	1	—	—
	3.254	5	—	—	004	1.443	1	—	—
111	3.105	10	3.21	10	040	1.375	2	1.377	1
	—	—	3.17	2		1.330	3	1.341	1
	—	—	3.04	2	133, 330, 141	—	—	1.290	1
200 β	2.919	5	2.95	1	331	1.251	6	1.252	1
	—	—	2.75	5	240, 142	1.214	7	—	—
200	2.644	9	2.65	1	005	1.174	3個	—	—
	—	—	2.49	1	224, 034	1.116	1	—	—
120	2.410	2	2.44	1	143	1.099	5個	—	—
022 β	2.113	4	2.23	1	155 β	1.048	3	—	—
220 β	2.017	3	2.07	1	125	1.034	2	—	—
	—	—	1.989	5	351 β	1.011	1	—	—
022	1.925	9	1.949	2	251	0.9976	1	—	—
	—	—	1.892	4	026	0.9728	3	—	—
220	1.833	8	1.852	3	252, 441, 334	0.9587	1	—	—
131 β	1.788	1	—	—	006	0.9272	4個	—	—
222 β	1.725	1	1.687	2	351	0.9145	2	—	—
113	1.637	5	1.662	3	026	0.8996	4個	—	—
131	1.609	8	1.612	2		0.8650	3個	—	—
222	1.559	6	1.568	1	335, 112	0.8414	1個	—	—
						0.8308	1個	—	—

結　　論

1. 人工ウラン酸化物の結晶構造は，多種多様—そのうちのウランの様々な酸化度で対応する—を示すので，天然において相似性のものが求められない。天然においては，ウランの酸化物の性質および組成が不定であつても，結晶構造は，人工 UO_2 で同定される CaF_2 の立方体構造型を保存している。この唯一の結晶形態は天然のウラン酸化物中に存在する。

2. 閃ウラン鉱およびピッチブレンドの天然酸化－4原子価ウランのみからなる酸化物として初成状態の鉱物組織中に容易にみられる—が進行すると，ウランの一部は，6（原子）価ウランに移行して構造中に残留するとともに，4価ウランの同形置換が行われる—置換が起ると，閃ウランおよびピッチブレンドの unit cell のダイメションが縮小する。したがつて a 値と酸化度との間には，一定の相関関係が存在するから，X線解析によつて酸化物の変態部分の

X値を知ることができる。

3. ウランの大部分が6価状態へ転移すると，酸化物の分散度が徐々に増大し，その破砕はウラン酸化物の粉状変種—黒色ウランの形成を誘導する。

4. 空気中で天然ウラン酸化物を焼結して人工酸化を行うと，人工ウラン酸化物より安定していることを示している。すなわち CaFe 型の初成結晶構造は，400～700° まで保存されるが人工酸化物では 175° で破壊される。400～700° では，天然ウラン酸化物は X 相，Y 相，U_3O_8 相へ転移する。Y 相は，閃ウラン鉱・ピッチブレンドおよび黒色ウラン（著しく酸化されているもの）を焼結した場合に生成される。U_3O_8 へのピッチブレンドおよび黒色ウランの変態温度は，初成物質の酸化度によつて異なる。天然ウラン酸化物の焼結によつて若干の結晶相が生成されることが研究によつて明らかにされているから，Conybeare および Nuffield が提案した天然ウラン酸化物の酸化度の評価方法—焼結産物の1相または2相による—は，弱酸化度または中位酸化度のピッチブレンドに限つて用いられるべきである。U_3O_8 の暗褐色相および Y 相の鮮明なオレジ色は，X 線による相解析を行わなくても，ピッチブレンドあるいは黒色ウラン試料の酸化度を質的に知る基準となる。

546.81 : 553.44 : 550.93

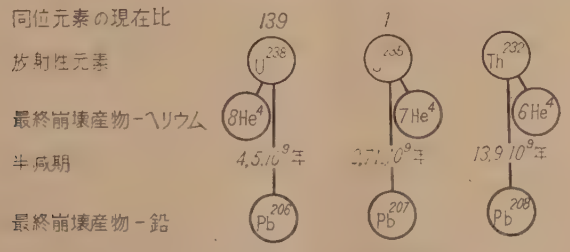
含鉛金属鉱床における鉛の同位元素の組成差の地球化学的意義について*

A. N. Tugarinov
小 西 善 治訳

現在絶対生成年代を決定するために，ウラン・トリウム鉱石の鉛の同位元素を利用する方法はよく知られている。したがつてこれらの研究では，鉛鉱床を構成するいわゆる普通の鉛の同位元素組成の変動から誘導される法則性が検討されている。現在同位元素組成の変動知識を裏付ける類似の鉛の同位元素解析が，すでに200以上になるにもかゝわらず，その結果は，確証に乏しい地質年代尺度の構成と，元素の生成年代，地球の成長年代および地球の初成鉛同位元素組成の決定に利用されている。

本論文では，含鉛鉱床の成因的特性を確立するために，様々な鉛の同位元素組成の現在の知識を利用した。まず本論に入るに先立つて，鉛同位元素研究の主要方向について述べておこう訳註1)。

自然に産する鉛の同位元素組成は，4主要同位元素，Pb^{204}, Pb^{206}, Pb^{207}, Pb^{208} の存在によつて決定される。後の3種アイソトープは，U^{238}, U^{235}, Th^{232} の放射性壊変の最終産物である（第1図）。したがつて，地球上におけるその量は増加する。Pb^{204} の元の放射性元素について



第1図 ウランおよびトリウムの放射性壊変図

は確かめられていない。いま Pb^{204} は，われわれに知られていない放射性元素の最終壊変産物であると仮定するならば，その半減期にきわめて大きいから，Pb^{204} の量の変化は，実際上認められないであろう。したがつて地球上における Pb^{204} の量は不変とみなされるであろう。

地殻の同位元素組成と時間との函数的関係は多くの研究者によつて利用されている。最近は Pb^{206}, Pb^{207}, Pb^{208} の濃集曲線を利用して，地球および地殻の生成年代を決定している（前記論文参照）。この研究で重要な点は，地殻の鉛の同位元素組成が時間の経過とともに，Pb^{206}, Pb^{207}, Pb^{208} の同位元素の含有量の増加の側へ変わつていく点である。

1939年にはアメリカの物理学者 Nier は，様々な生成年代の内成含鉛金属鉱床産の方鉛鉱中における鉛の12試料について質量分析を行い，次のような結果を得ている。鉛の同位元素

* Тугаринов, А. И.: О Геохимическом значении раздичий изотопного состава свинца в свинцово-рудных месторождениях, Известия академии наук СССР, Серия геологическая, Но 4, 1955.

訳註1) 鉛のアイソトープとその地球化学的意義，地質調査所月報，Vol. 8, No. 4, 1957 参照

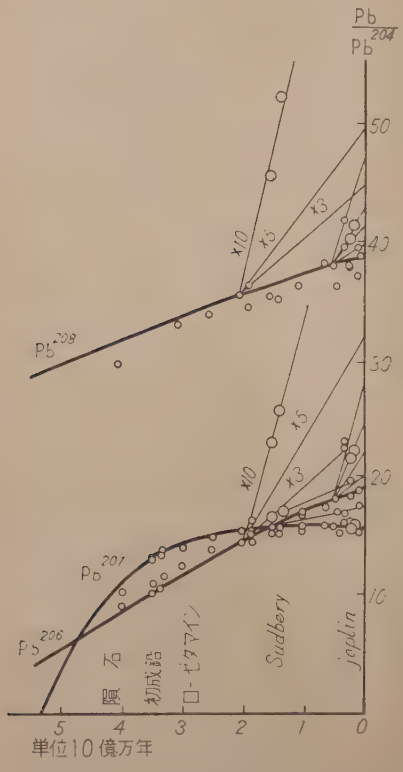
組成は，充分感知しえられる程度の変動を示すが，その原子量はほとんど変わらない[1]。

Nier は，鉱床の生成年代が古くなると，鉛中の Pb^{206}, Pb^{207}, Pb^{208} の含有量が低下することを初めて確認した。さらに Nier は，マグマ中に存在するウランとトリウム—その内の鉛の含有量と比例している—の放射性壊変で生じる Pb^{206}, Pb^{207}, Pb^{208} の放射性源アイソトープによつて(連続的)絶えず富化されることを明らかにしている。

鉱床(石)が生成される場合に，マグマの溜りから遊離される方鉛鉱の鉛には，鉱石床の生成の瞬間におけるマグマの Pb の同位元素組成に対応するような同位元素組成の跡が残される。このような現象は次の原因で起きる。すなわち，ウランとトリウムと孤立して存在する鉛は，マグマから析出後には，放射性源同位元素の規則的な附加を受けないからである。方鉛鉱の型で捕捉される分散ウランとトリウムの量は，方鉛鉱の鉛の同位元素組成に著しい変化を及ぼさない。

1946年には Holms は Nier が求めた鉛の同位元素組成数値に基づいて，地球の生成年代の独創的な理論的計算法を提案した。Holms はこの場合，放射源鉛に固有の濃集法則に対応する近似的地質年代尺度を確立するために，既知の鉱床の生成年代(地質学的に確かめられた)と，その鉱床から産出する鉛の同位元素組成を利用した。Holms は，地球の生成年代を $3.35 \cdot 10^9$ 年と決定した。

1952年には Vinogradov, Zadorozhnyi は Nier の25数値と種々の生成年代に属する32鉱床の同一元素組成の新しいデータとに基づいて，地殻の限界生成年代を算出した。Vinogradov は，まず地殻がウランとトリウムで富化される原因となる地球上の物質の潜在分化作用から出発して，地殻の極大生成年代を $5.5 \cdot 10^9$ 年と推定した。



第2図 鉛同位元素の存在量の時間的変化を示す

この理論的実験研究は，ここでは詳細に論じない。しかし U^{235} の半減期が著しく小さいために，地球の最初の生活期には Pb^{207} の増加はきわめて激烈であつたが，その後は U^{235} の大部分の壊変が終了したために，地球上における Pb^{207} の含有量はほとんど変わらなかつたが，Pb^{206} と Pb^{208} の増加は，以前のように強烈に行われた(第2図)。

内因的鉱床の鉛の同位元素組成と，それの地質学的生成年代との函数的関係は，地殻の推定年齢の算出のためばかりか，含鉛金属鉱床の地質編年尺度を求めるために，多くの研究者によつて利用されている。しかしこの場合には，内因的含鉛金属鉱床の成因的特性および鉱石中の鉛の同位元素組成と，それの生成時間との函数的関係の歪みの確率を考慮に入れていない。この種歪みは，マグマの上昇過程でありうる混合現象か，または造岩鉱物中におけるウラン・トリウムの不規則分布か，いずれかによつて起きる。

1 Nier, A. O.: Variations in the relative abundances of the isotopes of common lead from varous sources, Journ. Am. Chem. Soc., Vol. 60, 1938

McCrady の研究[2]によれば，現代の大部分の鉱床から産出する鉛は，きわめて古い地質年代を示す。もちろん，鉛がマグマから遊離した瞬間と，鉛が鉱石の形ちで安定する期間との間には，長期間，ときには1000万年を要したことが推定される。この期間鉛は移動階梯にあったことが考えられる。この立場に立ち，鉛がマグマから遊離した瞬間を，鉛の生成年代の決定の基準にとつても，種々の成因の鉛の混合効果と異なるマグマの溜りにおけるウラン・トリウムの様々な含有量とを考慮に入れないで，類似の地変の地質学的編年尺度を決めようとすれば，失敗に終わるであろう。

ほとんど初期の研究者は，地殻の鉛組成の平均変化曲線から著しい偏倚を示す個々の“異常”(anomally)を算出する場合には，地質学的データによつて得られるような時間曲線と，鉛の同位元素組成の変化理論曲線(時間)との極大一致とを求めることを省いている。したがつて，Rik, Avdzeiko が個々の地質年代に対して，鉱床産の鉛の同位元素組成のかなりの変動範囲を確かめているが，成功とはいえないようである。すなわち，求められた様式は鉱床の地質学的絶対年代の直接決定のために地質学的編年尺度として役立たないからである。

地質学の対象としては，決定することは地質年代でなく，多くの場合，鉱床の成因的特性にある。したがつて鉱床から産出する鉛の同一元素組成の変動がきわめて興味がある。とくに興味があるのは，極端な値を示す異常現象や，理論曲線から比較的僅かな偏倚を示す場合である。次に地変によつて起きる鉛の同位元素比の偏倚のおもな例について述べよう。第2図にみられるように，熱水鉱床の鉛の同位元素組成は，理論的曲線からの偏倚(曲線の右側)が顕著である。すなわち，“異常”量は地球の生成年代と比例して著しく増大する。したがつて，鉛同位元素の存在に対しては，現代に近づくに従つて(地球の年齢とともに)，種々の地質学的物体内における鉛の同位元素の濃集・分化で特色づけられるようになる(第2図)。

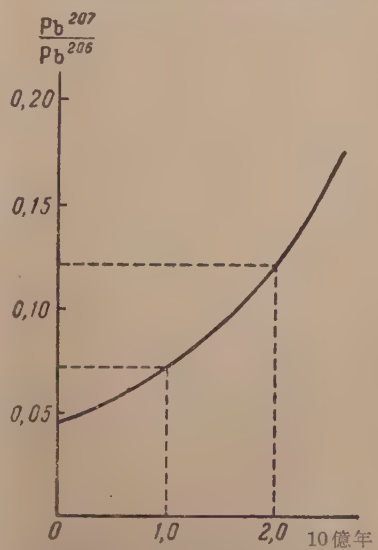
地球化学的過程で起きる鉛同位元素の分離〔天然の交換膜を通る拡散と，gas transfer とによつて起きる溶液内の熱拡散(thermodiffusion)による〕を仮定するならば，鉛の同位元素分離にはきわめて多様な傾向が起きるはずである。しかし同位元素組成の本質的な偏倚には，きわめて合法則的な特性がみられ，その特性は熟成効果によるか，原初マグマのウランまたはトリウムの含有量の上昇によるか，いずれかによつて明らかにできるであろう。

実験室では鉛の同位元素の分離は，こんにちに至るまで成功していないようである。反対に類似研究過程では，鉛の各同位元素の非分離性を基礎におく追跡が行われている。

第3図によれば，含ウラン鉱物が現在まで変わらないものとすると，含ウラン鉱物の生成年代が古くなれば，その鉱物内の Pb^{207} : Pb^{206} の比が高くなることが明らかである。

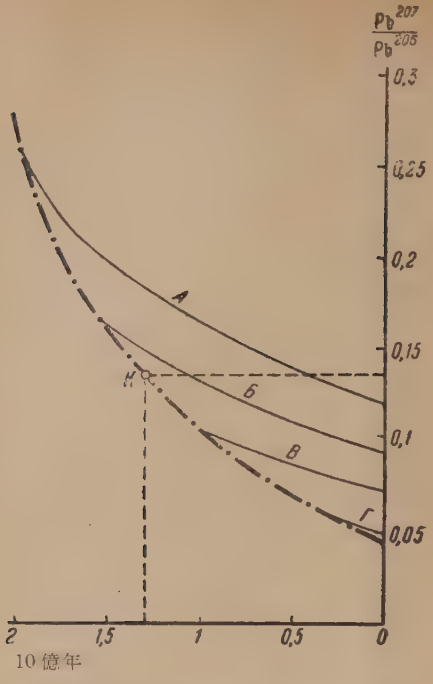
第4図によると，含ウラン鉱物では Pb^{207}: Pb^{206} 比が発生瞬間から時間とともに，いかに変わるかを示している。

このような鉱物と，そのなかに蓄積する鉛とが早期に破砕されて遊離されると，このような鉛中の Pb^{207}: Pb^{206} 比は高くなる。



第3図　種々の生成年代に属するウラン鉱物の Pb^{207} と Pb^{206} との比の現在値曲線

2) McCrady, E.: Lead isotopes and the Earth's age, Trans. Am. Geoph. Un., Vol. 33, No. 2, 1952



第 4 図 種々の生成年代のウラン鉱物における鉛 (Pb^{207} と Pb^{206}) の同位元素組成の変化を示す

A : 20 億年前に生成された鉱物の Pb^{207}/Pb^{206} の変化曲線

б : 15 億年の鉱物の Pb^{207}/Pb^{206} の変化曲線

B : 10 億年の 〃 〃

Г : 2 億年の 〃 〃

したがつて二次的に次の問題が考えられる。すなわち岩石中における鉛とウランとの共存は，第一にその組成に反映し，Pb^{206} と Pb^{207} 同位元素の岩石中における含有量が一般に増加するばかりか Pb^{206}: Pb^{207} の一定比が共存期の長さと分離期(現在から)とによつて変わつてくる。例えば，10 億年間に起きたウランによるマグマまたは岩石の富化は，そのうちの Pb^{207} 同位元素の増加の形ではあまり表われないが，Pb^{206} 同位元素の富化となつて著しく反映するようである。25 億万年からウランの富化は，鉛の両同位元素含有量の顕著な増加を誘導するようである。

第 2 図には，地殻の鉛同位元素組成の変移曲線が示されてある。細線は種々の時代にウランとトリウムとによつて富化(10 倍以下) される岩石の同位元素組成の理論変移曲線を示している。この種変移曲線が扇型を表わすのは，岩石が 20 億年後にウランとトリウムとで 3 倍富化されることを示している。

マグマが古期鉛を含有する堆積岩で富化されると，マグマの Pb^{207}: Pb^{206} 同位元素比の顕著な増加を招き，同時に新期鉛と堆積物との間に同化作用が働くために，Pb^{206} 同位元素の含有量が僅か増加するであろう。

このように混合過程 (contamination process) を検討すると 2 つの場合を区分できるであろう。

1. ウランまたはトリウムの含有量の増加または減少を示す岩石でマグマが富化される場合

2. 古期鉛を含有する岩石によつてマグマが富化される場合，この種富化は古期鉛の現世熔融によるか，または組成の "異常" な古期鉛によることが考えられる。

第 2 図によると，事実上いわゆる "異常現象" の場合—極端な場合を含む—は，第一範疇の現象で解明できることが明らかである。すなわち，鉱化熔液が地球の年齢の最後の 20 億年から 15 億年にトリウムとウランとで比較的僅か富化されたことが考えられる。

ウランとトリウムとで富化された瞬間は，岩石に固有の熔融時期かマグマによる周辺岩石の吸収期かを意味しているものと考えてはならない。この瞬間は，ウランまたはトリウムの含有量の上昇した原岩石の生成ないし堆積，または変成—広い言葉の意味) とのいずれによつても生じる—する瞬間を示唆し，原岩石はその後同化作用を受けることが考えられる。この場合，きわめて重要な留保条件は，現在の異常現象を解明するために，長期間にわたつて，分別作用を受けるマグマの溜りの存在を認める必要がないが，マグマの溜りの周期的回春は充分に仮定できる。

第 2 図からは次のような重要な地質学推論が求められる。すなわち現在みられる鉛同位元素組成の "異常" は 15 億年—最大 20 億年—に始まる地球上の物質の分化 (differentiation) 産物であつて，分化の瞬間までは，地殻の組成はこんにちよりもはるかに均一であつた。同一年代の地殻の理論同位元素組成と古期鉛組成との一致の頻度が高くなると，その年代に生成さ

れた新期鉛でも，晩期の地球上物質よりも古期の物質がはるかに均一性であつたことを示している。分化後10億年を経過した現在では，いま直ちに実際上観察されないが，さらに大きい異常現象が地球上の各地域に存在していることが想像できる。このことは，現在における地球上のウランおよびトリウム分布の不規則性は，例えば10億年～20億年よりも，きわめて大きいことから明らかである。

30億年の生成年代を示す地球の最古期地域(例えば Rosetta mine は，地殻上で行われる普遍的な変成作用の最古期の段階にあたる可能性がきわめて大きい。

しかし30億年前には，地殻の組成が均一化する一般的な傾向があるにもかゝわらず，鉛の同位元素分布，換言すれば鉛の放射性先行者—ウランおよびトリウム—の分布構造についても，非対称性が明らかにみられる。例えばヨーロッパと北アメリカの，同一生成年代に属する鉛の同位元素組成を比較してみるだけで，アメリカとカナダ鉱床の鉛の放射性同位元素の含有量が比較的高いことが明らかとなる。したがつて地球上の物質の存在初期には，物質の分化度が低度であつたにもかゝわらず，地球の各地域のウランおよびトリウムの含有量の変動と関連性をもつ緩慢な異常現象がすでに起きていた。

高濃度溶液の現在の考え方によると周辺岩石中に分散する鉛は，この種溶液にほとんど影響を及ぼさない。したがつて周辺岩石の鉛と鉱化溶液との混和現象は，あまり重要なものと考えられていない。

しかしこの規則には珍らしい例外がある。例えば古期ウランまたはトリウム鉱床地域に発達する鉛鉱床には，Pb^{207} と Pb^{206}，また Pb^{208} 組成の普通鉛の著しい混和現象が起きている。Russel R. D., Farquar R. M., Cunning G. L., Wilson J. T. は，Sudberg の異常鉛の成因をこの混和効果によつて説明している。

この種の影響は，同一鉱床中に存在する生成年代の異なる鉛の同位元素組成の研究に重要な意味をもつている。同一鉱床中で起きる鉛の同位元素組成の偏倚現象—本論文では“同位元素転移と名付けることにする—は，鉱石の生成が著しい時間的間隙をおいて起り，その間にマグマの溜りの鉛の同位元素組成が成長するか，または他の同位元素組成の周辺岩石の鉛で混和された変成熔液(metamorphic solution)が出現することを示している。

次に各対象物の鉛の同位元素組成と，その理論的組成(鉛の平均同一元素組成を意味する)との偏倚に関する上述の考え方について，具体的な例を検討してみよう。

まず鉛の放射性同位元素の含有量の高い Joplin と Sudbery のデータをみてみよう。

Nier, Vinogradov, Colling で12の同位元素組成の決定が行われている。Joplin のデータによると，明らかに同位元素転移で区別される2型の鉛が存在している。

Pb^{206}, Pb^{207}, Pb^{208} に富化されている鉛（方鉛鉱）は，この鉱床で最も晩期に生成されたものであつて，地質学的データによると，極大生成年代は2億年を超えないことが考えられる(Nier による)。

Pb^{208} および Pb^{206} の著しい変化が，比較的低度の Pb^{207} の偏りによつて表われている同位元素転移の特性を利用すると第2図の混和曲線が求められる。この曲線によると，2種の鉛鉱石の生成期には著しい時間的間隙が存在するとともに，鉱液中に吸収された岩石のウランおよびトリウムによつて，比較的新しい時代(約5億年前)に富化されたことが明らかになる。

さらに興味ある結論は，Pb^{206}, Pb^{208} ばかりでなく，Pb^{207} の含有量の高い Sudbery 産の鉛の同位元素組成の2決定から求められている。このような状態は，Sudbery 鉱床がきわめて古い時代，すなわち Pb^{207} の増加が，現在よりもはるかに盛んに行われていた時代に生成されたことを示している。このことは，Sudbery 鉱床の生成年代が $2,5 \cdot 10^{-9}$ オーダであることが知られているから，地質学的データと矛盾しない。

混和曲線(第2図)によると，Sudbery 型の鉛を含む金属鉱床は，対応生成年代の岩石の吸収などの起きる5億年前から，マグマがウランおよびトリウムで10倍富化されて，$1,5 \cdot 10^{-9}$

年前に生成されたことが明らかとなる。現在決定されている同位元素転移は，Sudbery の鉱石の各生成期に 1 億年を超える著しい時間的間隙の存在することを示している。

したがつて Sudbery の鉱床については，鉱石中における Pb^{207} の含有量が比較的高いことと，Pb^{207}: Pb^{206} 比の高いことからみて，古い時代に生成されたことが確かにいえる。これに反して Joplin については，Pb^{206} の含有量の低い点からみて，新しい時代に生成されたことが考えられる。さらにあらゆる場合を通じて，生成時期の著しく異なる鉱床の生成階梯は，両鉱床産の鉛の同位元素組成に反映している。

本論の印刷中に，筆者の見解とある程度一致する Russel, Farquar らの論文が発表された[3]。

この論文では異常効果を次のように説明している。

第 3 表

No.	場 所		Pb^{206}/Pb^{204}	Pb^{207}/Pb^{204}	Pb^{208}/Pb^{204}
1	Mc Kine	1,000	22.89	16.72	44.92
2	〃	960	23.03	16.69	45.19
3	〃	800	16.30	15.85	36.97
4	〃	600	16.43	15.96	36.93
5	Falconbridge	3,300	24.29	17.04	45.70
6	〃	2,400	23.70	16.92	45.35
7	〃	1,700	24.20	16.95	45.58
8	Food mine (両盤に鉱染する)		15.99	15.84	36.56
9	Food mine (鉱床生成後滑動箇所に胚胎する)		23.10	16.90	45.04
10	Garson mine		22.95	16.69	44.79
11	〃 (第 9 と同様な状態を示す)		23.00	16.61	44.78
12	Worthington mine		26.00	16.94	52.21
13	Hardy mine	750	23.23	16.77	52.64
14	Fair bnak twp (変形徴ペグマタイト)		16.20	15.76	36.99

表中の 3, 4, 8, 14 の試料は，平均普通の鉛の組成を表わすとするならば，

$$\frac{Pb^{206}}{Pb^{204}}=16.23;\ \frac{Pb^{207}}{Pb^{204}}=15.85\ \frac{Pb^{208}}{Pb^{204}}=36.86$$

となる。残余の鉛は同一地域の一層古期の放射性元素鉱床源のウラン・トリウム混合物で汚染された鉛とみなされる。したがつて仮想“添加鉛”の同位元素存在比は容易に計算される。

$$Pb^{204}=0;\ \frac{Pb^{207}}{Pb^{206}}=0.134;\ \frac{Pb^{208}}{Pb^{206}}=1.54$$

類似の鉛は著者が正しく指摘しているように，鉱床の生成期が 13 億年より古くなく，鉱床の Th-U の現在比が 5.2 であることを示している。この種のデータと地殻の鉛の平均分布曲線によつて求められた普通鉛の 12 億年±1 億 2 千万年の生成年代とを比較して，著者は考えられうる Sudbery の生成年代を 12～13 億年であると述べている。

13 億年という数値は，Pb^{207}: Pb^{206} 比の 0.134 がウラン鉱物の生成時にあたる最大 13 億年前の含ウラン鉛中に存在していたという考え方に基づいて求められた（第 4 図の K 点にあたる）。一層古期のウラン鉱物では，この比例（13 億年）はさらに大きくなる。かりにウラン・トリウム鉱物の生成とほとんど同時的に変成作用を受けたとするならば，鉱床中の全鉛量の

3) Russel, R. D., Farquar, R. M., Cunning, G. L. a. Wilson, J. T.: Dating Galenas by means of their isotopic constituents, Trans. Am. Geoph. Un., Vol. 35, No. 2, 1954

18～25 %を構成するような放射性鉛が Sudbery 鉱床を生成した熱水溶液に，著者のデータから考えられるように放出されたことは信じられない。

添加鉛と一層古期のウラン・トリウム鉱床との関連性からみると，添加鉛では Pb^{207}: Pb^{206} の比が成立するはずである。

他方においては，あらゆる Sudbery 鉱床群には，普通鉛と“添加鉛”との混合物が常に一定量含まれているのは驚くべきことである。8例では，放射性添加鉛を 25 %，2例は 18 %，4例では0である。14分析で明らかに分離されたこの種の3例の鉛型の存在自体は，各例中における同位元素の“混和”の典型的な条件を示している。

したがつてこのような鉛型の生成には，マグマ源の鉛がはいり込んだことが確かに考えられそうである。さらに著者の計算した親の放射鉱床における現世の U と Th との比は，花崗岩状岩石の特性を間接に示しているが，ウラン鉱床の特性には完全にならない。

著者が記載している地質学的特性は簡約すると Sudbery の方鉛鉱の生成年代の異なることを物語つている。例えば第3表の 3，4，8，14 の普通鉛は，上部の坑道か，鞍中の鉱染鉱石から採取されたものである。反対に深所の鉱体と鉱床生成期の擾れと関連性をもつ鉱体で（見掛上二次鉱物）は，異常状態が認められる（第3表 9，11）。

ソ連の沿海州産の鉛（$\frac{Pb^{206}}{Pb^{204}}$ 17.38，$\frac{Pb^{207}}{Pb^{204}}$ 14.91，$\frac{Pb^{208}}{Pb^{204}}$ 36.70）とボリヴィヤ産の鉛（$\frac{Pb^{206}}{Pb^{204}}$ 17.75，$\frac{Pb^{207}}{Pb^{204}}$ 15.20，$\frac{Pb^{208}}{Pb^{204}}$ 37.88）とをみると，太平洋両岸に分布する鉱床の鉛同一元素の存在量にきわめて類似する変動がみられる。両鉱床区の生成年代は 2,500 万年～3,000 万年である。しかし鉱床の生成期が新しいので，多様な生成階梯を“同一元素の転移”で解明できない。このような場合には，マグマの様々な混和現象か，ウランとトリウムの著しく多様な含有量を示す様々なマグマかが問題になるであろう。

“理論存在量”にほとんど対応する放射性源同一元素の含有量の高い鉛鉱床，例えば Sinancha は錫を含んでいるのが特色となつている。したがつて，附近に存在する含錫貫入岩体が，鉱床と成因的に関連性をもつていることが考えられる。反対に貫入岩体から空間的に離れている“新鮮な”多種金属鉱床 例えば Tetukhe では，錫を含有していないで Pb^{206}, Pb^{207}, Pb^{208} の含有量の低い鉛の同一元素存在量で特徴づけられる その生成年代は“理論鉛”の先カンブリア紀にあたつている）。

以上の観察結果は，かつては単一のマグマの晶出過程と単一の鉱床地区に入れられていた両鉱床の成因的差異を物語つている。したがつて環太平洋地域には，生成深度の異なるマグマと関連性をもつ2型の鉱床の存在が考えられる。ウランとトリウムの含有量の減少が広域にわたつてみられる地域では，花崗岩組成の普通の貫入岩体に随伴する多種金属，錫鉱床と比較して“新鮮な”多種金属鉱床が広く分布している。

アルタイ山脈の多種金属鉱床地帯にも，次のように鉛の同位元素存在量が決定されている。

鉱　　床	Pb^{206}/Pb^{204}	Pb^{207}/Pb^{204}	Pb^{208}/Pb^{204}
Zurya novskoe	18.03	15.96	37.73
Rudnyi Altai	22.47	15.93	37.75
〃　〃	22.65	16.71	39.65
〃　〃	23.0	17.32	41.90

この数値は，Zuryanovskoe 鉱床の鉛鉱石の生成年代がデボン紀にあたつていることを示している。この種鉱体は，デボン紀の迸入岩中に層状に胚胎しているのが特徴となつている。さらに Rudnyi Altai に分布する類似の層状鉱床の鉛は，斑状岩石類の迸入と，鉱脈の存在とにより区別されるが，この鉱床については，3試料の同位元素存在量が決定されている。この3試料には，生成年代が古くなると Pb^{206}, Pb^{207}, Pb^{208} 存在量が増加することが明らかに認めら

れる。

したがつて鉱床の生成条件が著しく異なつているのが考えられる。すなわちこの場合には，マグマの溜りが異なつているか，あるいは第2地域（Rudnyi Altai）の鉱床の生成を誘導したマグマがウラン・トリウム鉛の混合によつて富化されたことが推定される。

さらに考えられる成因としては，層状鉱床と脈状鉱床とが存在する点からみて，層状鉱床の鉱物質物質が熔融して再沈殿したことがあげられる。

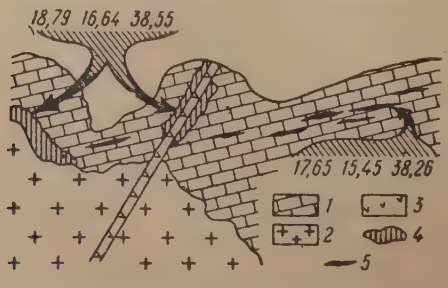
3試料の同位元素存在量によれば，きわめて古い時代のウラン・トリウム鉛が変成作用溶液によつて搬入され，そのために様々な地質時代に生成された鉛の同一元素存在量に著しい転移が認められる。したがつてこの地域（Altai）の同位元素存在量を系統的に研究すれば，初成鉛と再沈殿とが識別されるとともに，再沈殿の主要階梯が明らかになるはずである。

鉱　　床	Pb^{206}/Pb^{204}	Pb^{207}/Pb^{204}	Pb^{208}/Pb^{204}
Karatau Achisai 鉱床	17.04	15.07	37.13
Kara-Mazar, Altyn-Tophan 鉱床	17.27	15.11	36.89
中央カザスタン At-Dzhailyo 鉱床	17.49	15.13	37.18
Kuraminskii 山脈 Sumsarskoe 鉱床	17.65	15.45	38.26
Kirgiziya Kurgan 鉱床	17.68	15.43	38.42
Kirgiziya Kan 鉱床	18.02	16.26	38.41
Kirgiziya Gava 鉱床	18.79	16.64	38.55
Kirgiziya Bwwrdw 鉱床	18.51	15.79	39.22

カザスタンと中央アジアの鉱床の8個の数値には，2つの傾向が認められる。その1つは南部カザスタンおよび鉱染鉱床または層状鉱床（石灰岩中に胚胎する）で代表される北部 Kirgiziya の多種金属鉱床地区では，鉱床の分布地域が広大にもかゝわらず，鉛の同一元素の存在量が比較的一定しているのが特色となつている。そのほかに，この種鉛の同位元素存在量は，理論値に比較して放射源の同位元素の含有量が低い。

しかし Kuraminskii および南部・東部 Kirgiziya のスカルン質鉱床群および鉱脈群は，放射性源同位元素含有量の著しく高い鉛の同位元素存在量で特徴づけられる。

2型鉛のこの種の差異は，Kuraminskii 山脈地域における一鉱床地区でも，実際上認められる。この地域では，デボン紀の石灰層に胚胎する鉱染・層状鉛鉱床の同位元素存在量は Karatau 鉱床のそれに近い。しかし二畳系を破つている貫入岩体と関連性をもつているスカルン化鉱床産の方鉛鉱中の鉛は一層新期の同位元素存在量で特徴付けられる。したがつて北部 Kirgiziya 地域では，特異の地堡（barrier）が走り，その南方では，一層古期の鉛を含む鉱床は，遺骸の型で残つたことが考えられる（第5図）。



第5図 鉱床地帯の断面図
1—石灰岩，2—花崗岩，3—珪岩，4—スカルン，5—層状鉱体
鉛の同位元素比，Pb^{206}/Pb^{204}，Pb^{207}/Pb^{208}，Pb^{208}/Pb^{204}

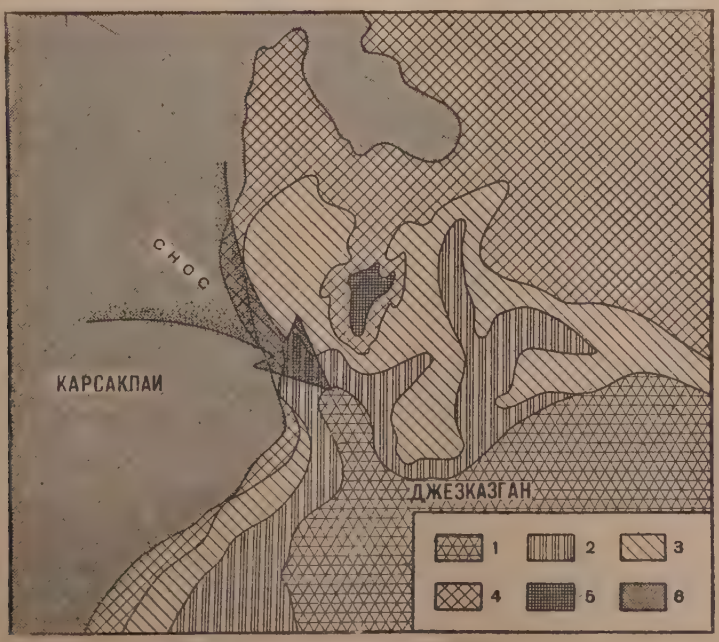
2型鉱床の同位元素転移の，このような差異を，著しくウラン・トリウム含有量の異なるマグマの溜りの差異によつて解明できるとは考えられていない。そのために，第1型の多数の鉱床が，ともかくも貫入岩

体から離れて，10 km にわたつて一定の石灰岩層に賦存している事実は，地質学的裏付けを欠くことになる。したがつて，鉱床が一鉱床地区の範囲に含められるようにみえる場合でも，成因的にも異なる含鉛金属鉱床が賦存するばかりか，その生成年代も著しく異なることを認めるのが，一層正しいように考えられる。

このような差異を確かめるのがきわめて大切であることは，第5図に示されてある Gavasaisk 鉱床の成因に関する筆者の考え方から明らかであろう。一般には方鉛鉱が石灰岩中に広域に鉱染し，層状鉱体が賦存—地域ではスカルン化鉱体が観察される—しているから，この地域を，スカルン質鉱床を中心とする巨大な鉱床帯とみなし，スカルン質鉱体生成過程の規模を裏付けるもののように考えている。しかし鉱体自体の規模はきわめて小さい。同一炭酸塩（石灰岩）地層の層状鉱床を代表する数 Sumsarskoe 鉱床から産出する鉛の同位元素存在量の研究からみられるように，この地域に広域に発達する方鉛鉱の鉱染鉱床がまつたく成因を異にし，スカルンよりも一層初期に生成されたものと考えるならば，見掛上の矛盾の原因が明らかとなる。

Dzhezkazagan $\left(\frac{Pb^{206}}{Pb^{204}}16.00,\ \frac{Pb^{207}}{Pb^{204}}14.38,\ \frac{Pb^{208}}{Pb^{204}}34.44\right)$ 鉱床地帯で採取された方鉛鉱の鉛の同位元素存在量は，理論値から著しい偏倚を示している。鉛同位元素比によれば，鉱床の理論生成年代は，先カンブリヤと考えられる。

Dzhezkazagan 鉱床は，陸源性炭酸塩質岩石中に賦存し，脈状銅－黄銅鉱・斑銅鉱—交代鉱床である。こんにちに至るまで，貫入岩体がとにかくみられないので，それが鉱床成因の疑問の原因となつている。他方においては，鉱床の盤を形成する地層は，鉱床地帯の北方および西方に露出する Karsakpaisk 地域の先カンブリヤ岩石の侵食によつて生成されたことが推定される。したがつてヘルシン造山期の鉱床以前には，この期に鉱床—生成期を入れていた—にとつては異常な同位元素組成を示すこのような鉛は，水成鉱床の生成過程において濃集したものと考えるのが論理にあつている。沈積の際に主要な役割をなした鉛は，侵食・削剝作用を受けた先カンブリヤ紀の変成岩と含鉛金属鉱床とから侵出されて海盆地域に出現した鉛である。第



1—二疊系
2—上部～中部石炭系
3—下部石炭系
4—デボン系
5—古生代初期の地層
6—先カンブリア紀の変成岩

第 6 図　Dzhezkazagan 地域の地質図

6 図参照)。この種鉛の同位元素組成は，実験室的研究によつて求められた同位元素組成と近似的に対応するはずである。

さらに Pb : Th と Pb : U との比が貫入岩体のそれよりも数オーダ高い先カンブリヤ紀の変成岩物質が破砕されて，海盆地域に運ばれてきたことを述べておく必要がある。このような現象を考慮に入れるならば，この種岩石が侵食によつて削剝されるとともに，そのなかの鉛の放射性同位元素鉛の含有量が一層低くなつたことが解明できるであろう。

任意の生成年代の花崗岩状貫入岩体が破砕されると，花崗岩のウラン・トリウムは全地殻のウランとトリウムの含有量に近似しているから，そのなかの鉛の同位元素組成は，その破壊時においては地殻の鉛の標式“理論”組成に対応していたはずである。したがつて花崗岩状岩石の破砕によつて生成されるヒドロゾル型態の鉛が海盆地域へ運び去られると，Dzhezkazagan 地域でみられるように，海盆地域の沈積堆積物中における鉛の放射性源同位元素の含有量低下が起らないはずである。

陸源性堆積物および海底堆積物の鉛の同位元素に一般的にみられる比例関係のよい例は，太平洋地域の様々な海泥があげられる。

鉱　　床	Pb^{206}/Pb^{204}	Pb^{207}/Pb^{204}	Pb^{208}/Pb^{204}
lomita 産泥灰岩	19.27	15.61	39.40
マンガン結核	18.91	15.69	38.68
赤色粘土	18.95	15.76	38.92

このデータから次のことが考えられる。すなわち現世の太洋中に分散する鉛の同位元素比は，現世の地殻中に存在する鉛の同位元素比の理論値にきわめて近いが，古期・新期大陸の侵食の度合が不均等なために，鉛の放射性同位元素の含有量が比較的僅かであるが，低いのが特徴となつている。

したがつて Dzhezkazagan 地域の含鉛金属鉱床の水成成因については，きわめて仮想的仮説であつて，同一地域の他の同種鉱床の研究によつて確認することが必要であるが，この仮説から次のことがさらに推定される。すなわち，この種鉛を含む地層が生成された堆積海盆地は，公海と隔てられ，そのために鉛—同位元素組成が先カンブリヤ期を示し，ある堆積盆地に特定である—の拡散と濃縮との可能性が除かれたことを仮定することが必要となる。

後者の 2 例をみれば，堆積層の鉛の同位元素組成の特性を，次のように定式化されるであろう。

1) 閉じられた堆積海盆底に鉛を含む地層が沈積・生成される場合には，その鉛は同一地域の同一生成年代に属する内因鉱床産の鉛とは，放射性鉛の含有量が一層低い点で異なつている。

2) このような海盆地域では，ヒドロゾルの型で溶解されている鉛の同位元素組成の濃集は，標式的な型で行われるはずであるから，鉛の同位元素は，同一盆地の同一生成年代に属する同一岩相の含鉛層の全延長にわたつて厳密にいつて一定となるべきである。

3) 太洋と堆積盆(地域)とが連絡している場合には，このような海盆地域に沈積する鉛の生成年代は，ほゞ理論値に等しいか，あるいは若干それよりも低くなるはずである。

結論として次のことがいえるであろう。

1) 鉱床地域内における鉛の同位元素組成の変動は，多くの成因問題—年代決定を含む—を解明するための重要な手段であるとともに，その地質学的物体に関する知識をまとめあげるのにきわめて有用な手段となる。

2) 鉱床地域内における鉛の同位元素組成の変動をみると，多くの内因鉱床には様々な生成階梯の鉱体が存在することが明らかになる。したがつて比較的短期間の鉱床生成期に多くの内

因的鉱床が生成されたという一般的な考え方には疑問が起きてくるはずである〔たゞし地表面に露出するまでの鉱体の変化(酸化帯)を除く〕。

一般の岩石に対して，反復繰り返えされた変成作用の複雑な履歴を認めるならば，鉱床地帯においても，同一現象の起きたことを除外する根拠はなんら存在しない。地質学的文献には，鉱床の複雑な多回春性の実例が記載されてある。

鉱床生成の全階梯の生成年代と成因とを確立し，種々の生成階梯の鉱床の探鉱指標を明らかにすることは，きわめて重要な地質学的課題である。この課題の解決は，多くの場合，同位元素の存在(組成)量の研究によつて促進される。

3)　水成源の含鉛鉱床の同位元素組成は，一般には同時代の熱水成鉱床と比較して，その組成が僅か“古期”生成を示すことと，同位元素組成が稼採鉱体の賦存層序の全延長にわたつて異常に一定であることとによつて異なつている。

この種の水成源鉱床中には晩期の変成過程で生じた一層新期の再沈殿鉱石が当然考えられるはずである。異なる時代に生成された，異なる組成の母岩から(循環溶液を媒介として)捕捉された鉛で汚染されるから，この種の鉱石では再沈殿鉛に必然的に同位元素転移が起きる。

鉛同位元素の地球化学に課せられた当面の課題は，すでに鉱床の様々な生成年代が地質的研究で識別されている地帯の考えられうるすべての鉛同位元素を詳細に明らかにすることにある。このような鉱床地区としては，ソ連では Altai 鉱床地区の西部 Tyan-shanya 鉱床地区があげられる。

さらに太洋の海水および様々な地層を構成する水成岩の鉛同位元素存在(組成)量を系統的に研究することが必要である。

地球化学者は，現在すでに 98 元素でなく，少なくとも数 100 にのぼる 98 元素の同位元素の分布(存在量)・濃集および移動の条件—複雑な物理化学的法則によつて決定される—を研究対象にとりあげる義務がある。

われわれを取り巻く物質の組成と，その時間的定変化に関する一層複雑な概念は，鉱床生成の秘められた面を明らかにするのに必要な，新しい知識の領域への途を開くであろう。

地質調査所月報 第9巻第9号 目 次

報 文

On the New Forms of Paleogene Molluscs from Japan

新潟県大倉鉱山地質鉱床および化学探鉱調査報告

岐阜県大垣市南方地下水電気探査概報

九州地方工業用地下水源予察調査報告

資 料

太平洋北西部の海淵の堆積物中における硫化鉄および硫化水素の分布について

地質調査所への連絡は

本所	神奈川県川崎市久本町（溝の口）135番地 電話 (70) 1146～1148番 (72) 4291～4293番
東京分室	東京都新宿区河田町8番地 電話 (34) 7131～8番
北海道支所	北海道札幌市南1條西18丁目 電話（3）5574番
仙台駐在員事務所	仙台市柳町通り28番地(仙台通産局内) 電話（3）2306番
名古屋駐在員事務所	名古屋市東区長塀町（名古屋通産局内）電話（4）6416番
大阪駐在員事務所	大阪市大淀区大仁西2丁目（大阪工業技術試験所内） 電話 大阪 (45) 7019番
広島駐在員事務所	広島市基町1番地（広島通産局内）電話 中（2）1945番
四国駐在員事務所	高松市六番町1の2（四国通産局内）電話 高松 5681番
福岡駐在員事務所	福岡市北浜町2の19番地（通産省福岡合同庁舎内） 電話 西局（2）6743番

昭和33年8月25日 印 刷
昭和33年8月30日 発 行

著者権所有 工業技術院地質調査所

印刷者 田中春美
東京都台東区東黒門町3番地
印刷所 合資会社 田中幸和堂印刷所
東京都台東区東黒門町3番地

U. D. C. 55

BULLETIN OF THE GEOLOGICAL SURVEY OF JAPAN

Katsu Kaneko, Director

Vol. 9 AUGUST 1958 No. 8

CONTENTS

I. Homma & Y. Ono : Electrical Prospecting for the Ground Water in the Western Part of Saitama Prefecture ..... (1)

N. Kurata, T. Andō & K. Mori : Ground Water Resources for Fabric Industry in the Southern Part of Tōkyō ..... (9)

H. Harada : On the Manganiferous Iron Deposits of the Abukuma Metamorphic Region ..... (23)

T. Nozawa : Conglomeratic Rocks of Mylonitic Origin, Accompanied by the Acid Dykes of Okuéyama, Miyazaki Prefecture ..... (33)

GEOLOGICAL SURVEY OF JAPAN
Hisamoto-chō, Kawasaki-shi, Japan

地質調
Bull. Geol.
Vol. 9, No.